

# LE JOURNAL DE PHYSIQUE

ET

## LE RADIUM

### SUR LE CALCUL DES SECTIONS EFFICACES DE DIFFUSION COULOMBIENNE

#### ENTRE CORPUSCULES DE SPINS 0, $\frac{\hbar}{2}$ OU $\hbar$

Par GÉRARD PETIAU,

Institut Henri Poincaré.

**Sommaire.** — Introduction d'une représentation simple pour les systèmes de matrices irréductibles de la théorie des corpuscules de spin 0 et  $\hbar$ . Application au calcul covariant des sections efficaces de diffusion coulombienne électromagnétique ou mésique (vectorielle, scalaire ou pseudoscalaire) entre deux corpuscules A et B de spins 0,  $\frac{\hbar}{2}$  ou  $\hbar$ .

**1. Quelques propriétés des équations d'ondes des corpuscules de spin 0 et  $\hbar$ . Représentations irréductibles simples.** — Nous rappellerons que les corpuscules de spin 0 ou  $\hbar$  sont représentés par les fonctions d'ondes  $\Phi(x, y, z, t)$ , solutions de systèmes d'équations aux dérivées partielles, linéaires et du premier ordre, de la forme

$$\left. \begin{aligned} & [P_\mu \Gamma^\mu + im_0 c] \Phi = 0, \\ & p_\mu = i\hbar \frac{\partial}{\partial x^\mu} \quad (\mu = 1, 2, 3, 4); \quad x^4 = ict. \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

Les  $\Gamma^\mu$  forment un système de quatre matrices liées par les relations générales [1]

$$\Gamma^\mu \Gamma^\nu \Gamma^\rho + \Gamma^\rho \Gamma^\nu \Gamma^\mu = \delta^{\mu\nu} \Gamma^\rho + \delta^{\nu\rho} \Gamma^\mu. \quad (2)$$

Des relations supplémentaires entre ces matrices restreignent celles-ci aux cas particuliers des représentations irréductibles correspondant, soit aux corpuscules de spin 0, soit aux corpuscules de spin  $\hbar$ .

La représentation générale la plus simple des matrices  $\Gamma^\mu$  satisfaisant à la relation (2) a été introduite par M. L. de Broglie [2] dans sa théorie du photon dans laquelle on pose

$$\left. \begin{aligned} (\Gamma^\mu)_{i_1 i_2; l_1 l_2} &= \frac{1}{2} [(\gamma^\mu)_{i_1 l_1} \delta_{i_2 l_2} + \delta_{i_1 l_1} (\gamma^\mu)_{i_2 l_2}] \\ &= \frac{1}{2} [\gamma_{(1)}^\mu \delta_{(2)} + \delta_{(1)} \gamma_{(2)}^\mu]_{i_1 l_1; i_2 l_2} \\ (i_1, i_2, l_1, l_2 &= 1, 2, 3, 4). \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

Les matrices  $\gamma_{(1)}^\mu, \gamma_{(2)}^\mu$  forment deux systèmes de matrices de Dirac indépendants

$$\left. \begin{aligned} & \gamma_{(r)}^\mu \gamma_{(r)}^\nu + \gamma_{(r)}^\nu \gamma_{(r)}^\mu = 2\delta_{(r)}^{\mu\nu}, \\ & \gamma_{(r)}^\mu \gamma_{(s)}^\nu = \gamma_{(s)}^\nu \gamma_{(r)}^\mu, \quad (r, s = 1, 2). \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

Nous supposons dans ce qui suit, pour faciliter l'écriture, que les matrices  $\gamma_{(1)}^\mu$  et  $\gamma_{(2)}^\mu$  sont écrites dans la même représentation, mais cette hypothèse n'est pas indispensable. Dans les premiers exposés de la théorie du photon donnés par M. Louis de Broglie, cette hypothèse n'était pas adoptée.

Les matrices  $\Gamma^\mu$  de la forme (3) constituent un système réductible. Nous indiquerons plus loin une méthode permettant d'utiliser cette représentation simple dans les cas d'irréductibilité associés aux spins 0 et  $\hbar$ .

Nous désignerons par  $\gamma^A$  une matrice quelconque du système des 16 matrices hermitiennes déduit de quatre  $\gamma^\mu$ , soit

$$\left. \begin{aligned} & \gamma^A = 1, \quad \gamma^\mu, \quad i\gamma^{[\mu\nu]} = i(\gamma^\mu \gamma^\nu - \delta^{\mu\nu}), \\ & i\gamma^{[\mu\nu\rho]} = i(\gamma^\mu \gamma^\nu \gamma^\rho - \delta^{\mu\nu} \gamma^\rho - \delta^{\nu\rho} \gamma^\mu + \delta^{\mu\rho} \gamma^\nu) = i\gamma^{[\sigma]}, \\ & \gamma^{[\mu\nu\rho\sigma]} = \gamma^1 \gamma^2 \gamma^3 \gamma^4 = \gamma^5. \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

Nous avons

$$(\gamma^A)^2 = 1.$$

Désignant par  $\gamma^{A+}$  la matrice transposée de  $\gamma^A$

$$[(\gamma^{A+})]_{ij} = (\gamma^A)_{ji},$$



on montre qu'il existe une matrice  $R$  hermitienne telle que l'on ait

$$\gamma^{\mu+} = -R \gamma^{\mu} R^{-1}, \quad R^2 = 1, \quad R = R^{-1} = -R^+. \quad (6)$$

Les matrices  $\gamma^{\Lambda}$  se répartissent au moyen de  $R$  en deux groupes :

$$1^{\circ} \text{ Les matrices } \gamma^{\Lambda_1}, \text{ soient } \gamma^{\mu} \text{ et } i\gamma^{[\mu\nu]}, \text{ telles que} \\ (R \gamma^{\Lambda_1})^+ = R \gamma^{\Lambda_1}; \quad (7)$$

$$2^{\circ} \text{ Les matrices } \gamma^{\Lambda_2}, \text{ soient}$$

$$\gamma^0 = 1, \quad i\gamma^{[\mu\nu\rho]} = i\gamma^{[\nu\sigma]}, \quad \gamma^{[\mu\nu\rho\sigma]} = \gamma^{\bar{\sigma}},$$

telles que

$$(R \gamma^{\Lambda_2})^+ = -R \gamma^{\Lambda_2}. \quad (8)$$

La représentation (3) des  $\Gamma^{\mu}$  étant d'ordre seize, le système (1) détermine seize fonctions d'ondes de type spinoriel  $\Phi_{i_1 i_2}$  ( $i_1, i_2 = 1, 2, 3, 4$ ).

On peut remplacer ces fonctions d'ondes par de nouvelles fonctions de type tensoriel  $\Phi^{\Lambda}$  ( $\Phi^0, \Phi^{\mu}, \Phi^{[\mu\nu]}, \Phi^{[\mu\nu\rho]}, \Phi^{[\mu\nu\rho\sigma]}$ ) en développant  $\Phi_{i_1 i_2}$  sur le système complet des seize matrices  $\gamma^{\Lambda} R^{-1}$ .

On écrit ainsi

$$\Phi_{i_1 i_2} = \sum_{\Lambda} (\gamma^{\Lambda} R^{-1})_{i_1 i_2} \Phi^{\Lambda} = \sum_{\Lambda_1} (\gamma^{\Lambda_1} R^{-1})_{i_1 i_2} \Phi^{\Lambda_1} \\ + \sum_{\Lambda_2} (\gamma^{\Lambda_2} R^{-1})_{i_1 i_2} \Phi^{\Lambda_2} \quad (9)$$

et réciproquement

$$\Phi^{\Lambda} = \frac{1}{4} \text{Tr} [R \gamma^{\Lambda}]_{i_1 i_2} \Phi_{i_1 i_2}. \quad (10)$$

Tenant compte de (7) et (8), on a

$$\frac{1}{2} [\Phi_{i_1 i_2} \pm \Phi_{i_2 i_1}] = \sum_{\Lambda_1} \left( \frac{1 \pm 1}{2} \right) (\gamma^{\Lambda_1} R^{-1})_{i_1 i_2} \Phi^{\Lambda_1} \\ + \sum_{\Lambda_2} \left( \frac{1 \mp 1}{2} \right) (\gamma^{\Lambda_2} R^{-1})_{i_1 i_2} \Phi^{\Lambda_2}. \quad (11)$$

Par suite, si l'on décompose  $\Phi_{i_1 i_2}$  en une partie symétrique  $\Phi_{(i_1 i_2)}$  et une partie antisymétrique  $\Phi_{[i_1 i_2]}$  par rapport à l'échange des indices  $i_1$  et  $i_2$ , soit

$$\Phi_{i_1 i_2} = \Phi_{(i_1 i_2)} + \Phi_{[i_1 i_2]}, \quad (12)$$

nous aurons

$$\left. \begin{aligned} \Phi_{(i_1 i_2)} &= \sum_{\Lambda_1} (\gamma^{\Lambda_1} R^{-1})_{i_1 i_2} \Phi^{\Lambda_1}, \\ \Phi_{[i_1 i_2]} &= \sum_{\Lambda_2} (\gamma^{\Lambda_2} R^{-1})_{i_1 i_2} \Phi^{\Lambda_2}. \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

Les fonctions spinorielles symétriques  $\Phi_{(i_1 i_2)}$  s'expriment donc uniquement au moyen des fonctions d'ondes tensorielles  $\Phi^{\Lambda_1}$ , les fonctions antisymétriques  $\Phi_{[i_1 i_2]}$  au moyen des fonctions tensorielles  $\Phi^{\Lambda_2}$ .

L'équation d'ondes (1) avec la représentation (3) des matrices  $\Gamma^{\mu}$ , soit

$$\left[ P^{\mu} \frac{1}{2} (\gamma^{\mu}_{(1)} + \gamma^{\mu}_{(2)}) + im_0 c \right] \Phi_{i_1 i_2} = 0 \quad (14)$$

nous donne multipliée par la matrice  $(R \gamma^{\Lambda})_{i_1 i_2}$  le système

$$\left\{ P^{\mu} \left[ \frac{1}{2} R (\gamma^{\Lambda} \gamma^{\mu} - \gamma^{\mu} \gamma^{\Lambda}) \right]_{i_1 i_2} + im_0 c (R \gamma^{\Lambda})_{i_1 i_2} \right\} \Phi_{i_1 i_2} = 0. \quad (15)$$

On voit immédiatement que si

$$\gamma^{\Lambda_1} \gamma^{\mu} = -\gamma^{\mu} \gamma^{\Lambda_1},$$

la matrice  $\gamma^{\mu} \gamma^{\Lambda_1}$  est du type  $\gamma^{\Lambda_1}$  et que si

$$\gamma^{\Lambda_2} \gamma^{\mu} = -\gamma^{\mu} \gamma^{\Lambda_2},$$

la matrice  $\gamma^{\mu} \gamma^{\Lambda_2}$  est du type  $\gamma^{\Lambda_2}$ .

Par suite,  $\gamma^{\Lambda}$  prenant toutes les valeurs successives du système (5), l'équation (15) nous donne, en prenant les traces successives, deux systèmes tensoriels indépendants ne faisant intervenir respectivement, le premier que les fonctions  $\Phi^{\Lambda_1}$ , le second que les fonctions  $\Phi^{\Lambda_2}$ .

Ces systèmes s'écrivent

$$\left. \begin{aligned} P_{\nu} \Phi^{[\mu\nu]} - m_0 c \Phi^{\mu} &= 0, \\ P_{\mu} \Phi_{\nu} - P_{\nu} \Phi_{\mu} - m_0 c \Phi_{\mu\nu} &= 0; \end{aligned} \right\} \quad (I)$$

$$\left. \begin{aligned} P_{\sigma} \Phi^{[\mu\nu\rho\sigma]} + m_0 c \Phi^{[\mu\nu\rho]} &= 0, \\ P_{\mu} \Phi_{[\nu\rho\sigma]} - P_{\nu} \Phi_{[\mu\rho\sigma]} + P_{\rho} \Phi_{[\mu\nu\sigma]} \\ - P_{\sigma} \Phi_{[\mu\nu\rho]} + m_0 c \Phi_{[\mu\nu\rho\sigma]} &= 0, \\ \Phi_0 &= 0. \end{aligned} \right\} \quad (II)$$

Les systèmes (I) et (II) constituent les systèmes maxwellien et non maxwellien de la théorie du photon de M. Louis de Broglie pour une masse propre  $m_0$  évanescence et pour une masse propre  $m_0$  convenable, indépendamment l'un de l'autre, les systèmes d'équations admis généralement pour représenter les mésons de type « vectoriel » et de type « pseudoscalaire ».

La représentation matricielle (3) conduit donc simultanément aux systèmes (I) et (II) et cette association interdit son utilisation dans le calcul des phénomènes dans lesquels interviennent des corpuscules représentés par un seul de ces systèmes, c'est-à-dire soit de type vectoriel, soit de type pseudoscalaire.

Les systèmes (I) et (II) se rattachent facilement aux valeurs propres du spin total du corpuscule.

En effet, on montre sans difficulté que le spin est représenté par les matrices

$$\mathbf{S} = \frac{\hbar}{2} [\hat{\sigma}_{(1)} \hat{\sigma}_{(2)} + \hat{\sigma}_{(1)} \sigma_{(2)}]. \quad (16)$$

Le spin total s'écrit alors

$$S^2 = |\mathbf{S}|^2 = \hbar^2 \frac{1}{2} \left[ 3 + \sum_p \sigma_{(1)}^p \sigma_{(2)}^p \right] \quad (17)$$

on voit que

$$(S^2)^2 = 2 \hbar^2 S^2.$$

Les valeurs propres de  $(S^2)$  sont donc 0 et  $2 \hbar^2$ .



Tenant compte de la relation de Pauli pour deux systèmes de matrices de spin

$$\sum_A (\sigma^A)_{i_1 m_1} (\sigma^A)_{i_2 m_2} = 2 \delta_{i_1 m_2} \delta_{i_2 m_1}, \quad (18)$$

on écrit encore (17)

$$(S^2)_{i_1 i_2; m_1 m_2} = \hbar^2 [\delta_{i_1 m_1} \delta_{i_2 m_2} + \delta_{i_1 m_2} \delta_{i_2 m_1}]. \quad (19)$$

Par suite, si  $\Phi_{i_1 i_2} = \Phi_{(i_1 i_2)}$ ,

$$S^2 \Phi = 2 \hbar^2 \Phi \quad (20)$$

et si  $\Phi_{i_1 i_2} = \Phi_{[i_1 i_2]}$ ,

$$S^2 \Phi = 0. \quad (21)$$

Ceci montre que les fonctions symétriques  $\Phi_{(i_1 i_2)}$  auxquelles correspondent les fonctions tensorielles  $\Phi^{A_1}$  sont associées à la valeur  $2 \hbar^2$  de  $S^2$  et que les fonctions antisymétriques  $\Phi_{[i_1 i_2]}$ , ou les fonctions  $\Phi^{A_2}$ , sont associées à la valeur 0 de  $S^2$ ; la formule

$$S = \hbar \sqrt{s(s+1)}$$

justifie les valeurs du spin  $s = \hbar$  et  $s = 0$  attribuées aux corpuscules représentés par les systèmes (I) et (II).

Pour obtenir à partir d'une représentation de la forme (3) des  $\Gamma^\mu$ , soit le système (I), soit le système (II) isolément, nous avons été amené à proposer [3] une modification simple des matrices (3) telle que dans le passage des fonctions d'ondes spinorielles aux fonctions d'ondes tensorielles, les fonctions  $\Phi^{A_1}$  ou  $\Phi^{A_2}$  disparaissent.

Ceci exige que  $\Phi_{i_1 i_2}$  se réduise alors uniquement, soit à sa partie symétrique, soit à sa partie antisymétrique.

Nous sommes ainsi conduit à introduire les deux matrices de projection

$$\left. \begin{aligned} \eta_{i_1 i_2; l_1 l_2}^+ &= \frac{1}{2} [\delta_{i_1 l_1} \delta_{i_2 l_2} + \delta_{i_1 l_2} \delta_{i_2 l_1}], \\ \eta_{i_1 i_2; l_1 l_2}^- &= \frac{1}{2} [\delta_{i_1 l_1} \delta_{i_2 l_2} - \delta_{i_1 l_2} \delta_{i_2 l_1}]. \end{aligned} \right\} \quad (22)$$

On voit immédiatement que

$$(\eta^+)^2 = \eta^+, \quad (\eta^-)^2 = \eta^-, \quad \eta^+ \eta^- = 0; \quad (23)$$

$$(\eta^+)_{i_1 i_2; l_1 l_2} \Phi_{l_1 l_2} = \Phi_{(i_1 i_2)}, \quad (\eta^-)_{i_1 i_2; l_1 l_2} \Phi_{l_1 l_2} = \Phi_{[i_1 i_2]}; \quad (24)$$

$$\eta^\pm \left[ \frac{1}{2} (\gamma_{(1)}^\mu + \gamma_{(2)}^\mu) \right] = \left[ \frac{1}{2} (\gamma_{(1)}^\mu + \gamma_{(2)}^\mu) \right] \eta^\pm. \quad (25)$$

Plus généralement, désignant par  $\Gamma^{A,B}$ , la matrice générale du système déduit des  $\Gamma^\mu$ , soit

$$(\Gamma^{A,B})_{i_1 i_2; l_1 l_2} = \frac{1}{2} [(\gamma^A)_{i_1 l_1} (\gamma^B)_{i_2 l_2} + (\gamma^B)_{i_1 l_1} (\gamma^A)_{i_2 l_2}], \quad (26)$$

on voit facilement que

$$\eta^\pm \Gamma^{A,B} = \Gamma^{A,B} \eta^\pm. \quad (27)$$

Multipliant l'équation (14) par  $\eta^+$  ou  $\eta^-$ , on obtient les systèmes équivalents à (I) et (II)

$$\left[ p_\mu \frac{1}{2} (\gamma_{(1)}^\mu + \gamma_{(2)}^\mu) + im_0 c \right] \Phi_{(i_1 i_2)} = 0, \quad (I_a)$$

$$\left[ p_\mu \frac{1}{2} (\gamma_{(1)}^\mu + \gamma_{(2)}^\mu) + im_0 c \right] \Phi_{[i_1 i_2]} = 0. \quad (II_a)$$

Posant

$$(\beta^\mu)^\pm = \frac{1}{2} (\gamma_{(1)}^\mu + \gamma_{(2)}^\mu) \eta^\pm, \quad (28)$$

ces systèmes s'écrivent encore

$$[p_\mu (\beta^\mu)^+ + im_0 c \eta^+] \Phi_{i_1 i_2} = 0 \quad (I_b)$$

$$[p_\mu (\beta^\mu)^- + im_0 c \eta^-] \Phi_{i_1 i_2} = 0 \quad (II_b)$$

et constituent des représentations matricielles simples des systèmes (I) et (II).

Les matrices  $(\beta^\mu)^+$  et  $(\beta^\mu)^-$  caractérisant respectivement les corpuscules de spin  $\hbar$  et de spin 0 s'écrivent

$$(\beta^\mu)_{i_1 i_2; l_1 l_2}^\pm = \frac{1}{4} \{ [(\gamma^\mu)_{i_1 l_1} \delta_{i_2 l_2} + \delta_{i_1 l_1} (\gamma^\mu)_{i_2 l_2}] \pm [(\gamma^\mu)_{i_1 l_2} \delta_{i_2 l_1} + \delta_{i_1 l_2} (\gamma^\mu)_{i_2 l_1}] \}. \quad (29)$$

Toutes les matrices du système déduit des  $(\beta^\mu)^\pm$ , soient  $(\beta^{A,B})^\pm$  s'expriment sous la forme

$$(\beta^{A,B})^\pm = \Gamma^{A,B} \eta^\pm. \quad (30)$$

La trace d'une matrice  $(\beta^{A,B})^\pm$  s'obtient immédiatement sous la forme

$$\begin{aligned} \text{Tr} (\beta^{A,B})^\pm &= \text{Tr} \left\{ \frac{1}{2} [(\gamma^A)_{i_1 l_1} (\gamma^B)_{i_2 l_2} \right. \\ &\quad \left. + (\gamma^B)_{i_1 l_1} (\gamma^A)_{i_2 l_2}] \eta_{i_2 l_2; i_1 l_1}^\pm \right\} \\ &= \frac{1}{2} [(\text{Tr} \gamma^A) (\text{Tr} \gamma^B) \pm (\text{Tr} \gamma^A \gamma^B)]. \end{aligned} \quad (31)$$

En particulier, en évaluant la trace de la matrice  $\eta \cdot \eta^\pm$ , on a

$$\text{Tr} \eta^+ = 10, \quad \text{Tr} \eta^- = 6. \quad (32)$$

## 2. Étude de la diffusion coulombienne.

Nous allons maintenant examiner comment se présente d'une façon générale le problème de la diffusion coulombienne entre particules de spin quelconque et analyser complètement le cas de la diffusion entre particules de spin 0,  $\frac{\hbar}{2}$  et  $\hbar$ .

Nous examinerons d'abord le cas de la diffusion électromagnétique ou mésique vectorielle.

D'une façon générale, nous considérons un corpuscule représenté par les solutions d'une équation d'ondes linéaire que nous écrivons

$$[p_0 \beta_0 + (p \beta) + m_0 c \beta_4] \Phi = 0. \quad (33)$$

Nous ne précisons pas la forme des matrices hermitiennes  $\beta_0, \beta, \beta_4$  que nous introduisons ici. Nous supposons qu'elles satisfont aux relations



qu'impose la théorie générale des équations d'ondes relativistes.

Nous admettons que l'opérateur  $\beta_0, \beta$  définit un quadrivecteur densité-courant pour lequel nous avons l'équation de conservation

$$\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} (\Phi^* \beta_0 \Phi) - \text{div} (\Phi^* \beta \Phi) = 0. \quad (34)$$

Nous admettons également que l'équation (33) possède des solutions représentées par des ondes planes à énergie positive de la forme

$$\Phi = u e^{i[Kc t - (\mathbf{K} \cdot \mathbf{x})]}, \quad (35)$$

avec

$$K^2 - \mathbf{K}^2 = \mu^2, \quad \mu = \frac{Mc}{\hbar}, \quad \mu_0 = \frac{m_0 c}{\hbar},$$

$M$  pouvant être distinct de  $m_0$ .

L'amplitude  $u$  est alors solution de l'équation

$$[K \beta_0 + (\mathbf{K} \beta) + \mu_0 \beta] u = 0. \quad (36)$$

Pour une transition entre deux états représentés par les ondes planes à énergies positives

$$u_0 e^{i[K_0 c t - (\mathbf{K}_0 \cdot \mathbf{x})]}, \quad u_1 e^{i[K_1 c t - (\mathbf{K}_1 \cdot \mathbf{x})]},$$

On a

$$(K_1 - K_0)(u_0^* \beta_0 u_1) + (\mathbf{K}_1 - \mathbf{K}_0)(u_0^* \beta u_1) = 0. \quad (37)$$

Nous allons maintenant montrer que, par une extension immédiate de la théorie de l'interaction électromagnétique coulombienne (ou mésique vectorielle), on obtient dans le cas de deux corpuscules A et B représentés par des équations d'ondes du type (33), un élément de matrice d'interaction généralisant l'élément de matrice de Møller.

Nous considérons un corpuscule A possédant la

charge  $e_A$  (ou le couplage caractérisé par la constante  $g_A$  avec un champ mésique vectoriel), passant de l'état  $A_0(K_{A_0}, \mathbf{K}_{A_0}, \mu_{A_0})$  représenté par l'onde plane à énergie positive

$$u_{A_0} e^{i[K_{A_0} c t - (\mathbf{K}_{A_0} \cdot \mathbf{x})]}$$

à l'état  $A_1(K_{A_1}, \mathbf{K}_{A_1}, \mu_{A_1})$  représenté par l'onde plane à énergie positive

$$u_{A_1} e^{i[K_{A_1} c t - (\mathbf{K}_{A_1} \cdot \mathbf{x})]}$$

en émettant un corpuscule de champ neutre  $\mathcal{C}_0(k_0, \mathbf{k}_0, \mu_0)$ . Ce dernier est absorbé par le corpuscule B qui passe de l'état  $B_0(K_{B_0}, \mathbf{K}_{B_0}, \mu_{B_0}; u_{B_0})$ ,

$$u_{B_0} e^{i[K_{B_0} c t - (\mathbf{K}_{B_0} \cdot \mathbf{x})]}$$

à l'état  $B_1(K_{B_1}, \mathbf{K}_{B_1}, \mu_{B_1}; u_{B_1})$

$$u_{B_1} e^{i[K_{B_1} c t - (\mathbf{K}_{B_1} \cdot \mathbf{x})]}$$

Dans un second processus, il y aura d'abord émission de  $\mathcal{C}'_0(k_0, -\mathbf{k}_0, \mu_0)$  par B et ensuite absorption de  $\mathcal{C}'_0$  par A.

La conservation de l'énergie dans le processus global et de la quantité de mouvement dans les processus élémentaires nous donne les relations

$$\left. \begin{aligned} K_{A_0} + K_{B_0} &= K_{A_1} + K_{B_1}, \\ \mathbf{K}_{A_0} + \mathbf{K}_{B_0} &= \mathbf{K}_{A_1} + \mathbf{K}_{B_1}, \\ \mathbf{K}_{A_0} - \mathbf{K}_{A_1} &= \mathbf{K}_{B_1} - \mathbf{K}_{B_0} = \mathbf{k}_0. \end{aligned} \right\} \quad (38)$$

A l'émission ou à l'absorption de  $\mathcal{C}_0$  représenté par une onde photonique (ou mésique vectorielle) de type, soit transversal, soit longitudinal, correspondent les éléments de matrice

$$\left. \begin{aligned} H_{1r}^{(1)} &= e_A \sqrt{\frac{\hbar c}{2 k_0 v}} [u_{A_0}^* (\beta n') u_{A_1}] e^{i[K_{A_1} - K_{A_0} + k_0] c t}, \\ H_L^{(1)} &= e_A \sqrt{\frac{\hbar c}{2 k_0 v}} \left[ \frac{u_{A_0}^* [(\mathbf{k}_0 \mathbf{n}) \beta_0 + k_0 (\mathbf{n} \beta)] u_{A_1}}{\mu_0} \right] e^{i[K_{A_1} - K_{A_0} + k_0] c t}, \end{aligned} \right\} \quad (39)$$

$n, n', n''$  désignant trois vecteur unitaires formant un trièdre associé au quantum  $\mathcal{C}_0(\mathbf{k}_0, (\mathbf{k}_0 \mathbf{n}) = |\mathbf{k}_0|$ .

Tenant compte des relations déduites de (37),

$$\left. \begin{aligned} (K_{A_0} - K_{A_1})(u_{A_0}^* \beta_0^A u_{A_1}) + [u_{A_0}^* (\mathbf{k}_0 \beta^A) u_{A_1}] &= 0, \\ (K_{B_0} - K_{B_1})(u_{B_0}^* \beta_0^B u_{B_1}) - [u_{B_0}^* (\mathbf{k}_0 \beta^B) u_{B_1}] &= 0, \end{aligned} \right\} \quad (40)$$

on obtient, après simplifications, un élément de matrice global qui s'écrit

$$\begin{aligned} \mathcal{H}^{(1)} &= \mathcal{H}_L^{(1)} + \mathcal{H}_T^{(1)} + \mathcal{H}_L^{(1)} \\ &= \frac{e_A e_B}{(K_{A_0} - K_{A_1})^2 - k_0^2} \left[ (u_{A_0}^* \beta^A u_{A_1}) (u_{B_0}^* \beta^B u_{B_1}) \right. \\ &\quad \left. - (u_{A_0}^* \beta_0^A u_{A_1}) (u_{B_0}^* \beta_0^B u_{B_1}) \right] \\ &\quad - \frac{e_A e_B}{\mu_0^2} (u_{A_0}^* \beta_0^A u_{A_1}) (u_{B_0}^* \beta_0^B u_{B_1}). \end{aligned} \quad (41)$$

Posant

$$\beta_\lambda = \beta, \quad \beta_0, \quad \beta_\lambda = \beta, \quad -\beta_0 \quad (\lambda = 1, 2, 3, 0),$$

nous écrivons encore

$$\begin{aligned} \mathcal{H}^{(1)} &= \frac{e_A e_B}{(K_{A_0} - K_{A_1})^2 - k_0^2} [(u_{A_0}^* \beta^A u_{A_1}) (u_{B_0}^* \beta^B u_{B_1})] \\ &\quad - \frac{e_A e_B}{\mu_0^2} (u_{A_0}^* \beta_0^A u_{A_1}) (u_{B_0}^* \beta_0^B u_{B_1}). \end{aligned} \quad (42)$$

Le premier terme est l'extension immédiate de l'élément de matrice de Møller. Le second terme constitue ce que l'on appelle le potentiel de coïncidence et l'on peut attribuer à son introduction un caractère artificiel permettant de le négliger dans la suite du calcul.

La formule de Møller est donc valable dans l'interaction coulombienne entre deux corpuscules de spin quelconque représentés par des équations d'ondes de la forme (33) lorsque l'émission ou l'absorption des corpuscules de champ s'effectue



par l'intermédiaire d'un quadri vecteur densité-courant satisfaisant à une équation de conservation de la forme (34).

La section efficace de diffusion coulombienne des particules A et B se calculera à partir de l'élément de matrice

$$\mathcal{H}^{(1)} = \frac{e_A e_B}{(K_{A_0} - K_{A_1})^2 - k_0^2} (u_{A_0}^* \beta_{A_1}^{\lambda\lambda} u_{A_1}) (u_{B_0}^* \beta_{B_1}^{\lambda\lambda} u_{B_1}) \quad (43)$$

en évaluant l'expression  $|\mathcal{H}^{(1)}|^2$ .

Nous supposons ici les particules A et B discernables.

Posant

$$\left. \begin{aligned} S_{A_0 A_1; \lambda\lambda} &= (u_{A_0}^* \beta_{A_1}^{\lambda\lambda} u_{A_1}) (u_{A_1}^* \beta_{A_0}^{\lambda\lambda} u_{A_0}), \\ S_{B_0 B_1; \lambda\lambda} &= (u_{B_0}^* \beta_{B_1}^{\lambda\lambda} u_{B_1}) (u_{B_1}^* \beta_{B_0}^{\lambda\lambda} u_{B_0}); \end{aligned} \right\} \quad (44)$$

nous écrivons encore

$$|\mathcal{H}^{(1)}|^2 = \frac{e_A^2 e_B^2}{[(K_{A_0} - K_{A_1})^2 - k_0^2]^2} [S_{A_0 A_1; \lambda\lambda} S_{B_0 B_1; \lambda\lambda}]. \quad (45)$$

Pour évaluer  $S_{A_0 A_1; \lambda\lambda}$  et  $S_{B_0 B_1; \lambda\lambda}$  en fonction des éléments dynamiques initiaux et finaux, il faut nous rappeler que  $u_{A_0}$ ,  $u_{A_1}$ ,  $u_{B_0}$ ,  $u_{B_1}$  sont des amplitudes d'ondes planes à énergie positive, normées dans le volume unité.

Mais alors que dans le cas du corpuscule de spin  $\frac{\hbar}{2}$ , cette norme, définie par

$$\int u_i^* u_i d\tau = 1 \quad (i = A_0, A_1, B_0, B_1)$$

ne soulève aucune difficulté, il n'en est pas de même dans la théorie des corpuscules de spin 0 ou  $\hbar$ . En effet, dans cette dernière théorie, on montre qu'en l'absence de champ extérieur l'équation

$$[p_0 \beta_0 + (p\beta) + m_0 c \beta_4] \Phi = 0 \quad (46)$$

entraîne, à titre de conséquence, l'équation

$$[p_0 + (p\beta') + m_0 c \beta_0] \Phi = 0, \quad (47)$$

avec

$$\left. \begin{aligned} \beta &= \frac{1}{2} [\alpha^{(1)} \alpha_4^{(2)} + \alpha_4^{(1)} \alpha^{(2)}], \\ \beta_0 &= \frac{1}{2} [\alpha_0^{(1)} \alpha_4^{(2)} + \alpha_4^{(1)} \alpha_0^{(2)}], \\ \beta' &= \frac{1}{2} [\alpha^{(1)} \alpha_0^{(2)} + \alpha_0^{(1)} \alpha^{(2)}], \\ \beta_4 &= \alpha_4^{(1)} \alpha_4^{(2)}. \end{aligned} \right\} \quad (48)$$

Il en résulte les deux équations de conservation

$$\frac{\partial}{\partial t} (\Phi^* \beta_0 \Phi) - \text{div} (\Phi^* \beta \Phi) = 0, \quad (49)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (\Phi^* \Phi) - \text{div} (\Phi^* \beta' \Phi) = 0. \quad (50)$$

Dans le premier cas, la grandeur conservative peut être considérée comme un flux d'électricité en caractérisant l'« existence » du corpuscule par

une constante intrinsèque, ou charge de telle sorte que celui-ci soit mis en évidence par la densité de présence  $e \Phi^* \beta_0 \Phi$  et le courant  $-ec \Phi^* \beta \Phi$ .

Dans le second cas, la grandeur conservative peut être considérée comme un flux d'énergie et l'existence du corpuscule caractérisée par une constante ou pseudocharge  $g$  de telle sorte que celui-ci soit mis en évidence par la densité d'énergie  $g \Phi^* \Phi$  et le flux  $-gc \Phi^* \beta' \Phi$ .

Il en résulte deux possibilités de normer les fonctions d'ondes selon que l'on considère l'existence du corpuscule mise en évidence par l'une ou l'autre des densités de présence  $\Phi^* \beta_0 \Phi$  ou  $\Phi^* \Phi$ .

Si l'on désigne par  $u^+$  l'amplitude de l'onde plane à énergie positive normée par la condition

$$u^{+*} \beta_0 u^+ = -\frac{1}{2}, \quad (51)$$

par  $v^+$ , l'amplitude de la même onde plane à énergie positive normée par la condition

$$v^{+*} v^+ = \frac{1}{2}, \quad (52)$$

on a entre ces amplitudes la relation

$$u^+ = \sqrt{\frac{K}{\mu}} v^+. \quad (53)$$

et cette relation permettra de passer d'une norme à l'autre.

Dans le cas du corpuscule de Dirac de spin  $\frac{\hbar}{2}$ , nous savons que l'on peut dans le cas de  $S_{A_0 A_1; \lambda\lambda}$  remplacer les amplitudes  $u^+$  des ondes à énergie positive par une amplitude correspondant à l'onde totale en introduisant un projecteur  $\Pi$  tel que

$$\Pi = \frac{K - (K\alpha) - \mu\alpha_4}{2K} = \frac{\Lambda}{2K}. \quad (54)$$

On a, en effet,

$$\Lambda u^- = 0, \quad \Lambda u^+ = 2K u^+, \quad \Lambda^2 = 2K\Lambda \quad (55)$$

et, par suite,

$$\Pi^2 = \Pi.$$

Si l'on adopte la représentation (48) des  $\beta^\mu$ , on obtient immédiatement en théorie du corpuscule de spin 0 et  $\hbar$  le projecteur

$$\Pi = \frac{\Lambda^{(1)} \Lambda^{(2)}}{4K^2} = \frac{[K - (K\alpha) - \mu\alpha_4]^{(1)} [K - (K\alpha) - \mu\alpha_4]^{(2)}}{4K^2}$$

et l'on a encore

$$\Pi^2 = \Pi.$$

Nous remarquerons que ce projecteur  $\Pi$  commute avec  $\eta^+$  et  $\eta^-$ .

L'introduction de ce projecteur va nous permettre de ramener le calcul de  $S_{A_0 A_1; \lambda\lambda}$  à un calcul de trace dans le cas du spin 0 ou  $\hbar$ .



Nous remplacerons d'abord les fonctions  $u^+$  par les expressions  $\Pi u$  correspondantes, d'où

$$S_{A_0 A_1}^{\lambda \kappa} = [u_{A_0}^* \Pi_{A_0} \beta^\lambda \Pi_{A_1} u_{A_1}] [u_{A_1}^* \Pi_{A_1} \beta^\kappa \Pi_{A_0} u_{A_0}]. \quad (58)$$

Si les fonctions  $u$  sont normées à l'aide de

$$\int u^* u d\tau, \quad (59)$$

cette hypothèse ayant été admise dans nos Notes précédentes [4], on obtient

$$S_{A_0 A_1}^{\lambda \kappa} = \text{Tr}[\Pi_{A_0} \beta^\lambda \Pi_{A_1} \beta^\kappa]. \quad (60)$$

Si l'on admet, au contraire, que les fonctions  $u$  sont normées à l'aide de l'intégrale

$$\int u^* \beta_0 u d\tau, \quad (61)$$

il faut introduire le facteur de passage des fonctions  $u^+$  aux fonctions  $v^+$

$$u^+ = \sqrt{\frac{\bar{K}}{\mu}} v^+, \quad (62)$$

ce qui nous donne

$$\begin{aligned} S_{A_0 A_1}^{\lambda \kappa} &= \frac{K_{A_0} K_{A_1}}{\mu_A^2} \text{Tr}[\Pi_{A_0} \beta^\lambda \Pi_{A_1} \beta^\kappa] \\ &= \frac{1}{16 \mu_A^2 K_{A_0} K_{A_1}} \text{Tr}[\Lambda_{A_0} \beta^\lambda \Lambda_{A_1} \beta^\kappa]. \end{aligned} \quad (63)$$

Dans ce qui suit, nous adopterons la norme (61) et l'expression (63) de  $S_{A_0 A_1}^{\lambda \kappa}$ . Nos résultats différeront donc par les facteurs  $\frac{K_{A_0} K_{A_1}}{\mu_A^2}$ ,  $\frac{K_{B_0} K_{B_1}}{\mu_B^2}$  de ceux que nous avons indiqués précédemment [3].

$$\begin{aligned} S_{A_0 A_1}^{\lambda \kappa} &= \frac{1}{16 \mu_A^2 K_{A_0} K_{A_1}} \text{Tr}[\Lambda_{A_0}^{(1)} \Lambda_{A_0}^{(2)} \beta^\lambda \Lambda_{A_1}^{(1)} \Lambda_{A_1}^{(2)} \beta^\kappa \tau_1^\pm] \\ &= \frac{-1}{16 \mu_A^2 K_{A_0} K_{A_1}} \text{Tr} \left\{ \Lambda_{A_0}^{(1)} \Lambda_{A_0}^{(2)} \left[ \frac{\gamma_{(1)}^\lambda \gamma_{(2)}^\kappa + \gamma_{(1)}^\kappa \gamma_{(2)}^\lambda}{2} \right] \Lambda_{A_1}^{(1)} \Lambda_{A_1}^{(2)} \left[ \frac{\gamma_{(1)}^\lambda \gamma_{(2)}^\kappa + \gamma_{(1)}^\kappa \gamma_{(2)}^\lambda}{2} \right] \tau_1^\pm \right\}, \end{aligned} \quad (69)$$

d'où, pour le spin 0

$${}_0 S_{A_0 A_1}^{\lambda \kappa} = \frac{1}{4 K_{A_0} K_{A_1}} [K_{A_0}^\lambda + K_{A_1}^\lambda] [K_{A_0}^\kappa + K_{A_1}^\kappa], \quad (70)$$

pour le spin  $\hbar$

$$\begin{aligned} {}_\hbar S_{A_0 A_1}^{\lambda \kappa} &= \frac{1}{4 K_{A_0} K_{A_1}} \left\{ [K_{A_0}^\lambda + K_{A_1}^\lambda] [K_{A_0}^\kappa + K_{A_1}^\kappa] \right. \\ &\quad \left. - \frac{2 q_{A_0 A_1}}{\mu_A^2} t_{A_0 A_1}^{\lambda \kappa} \right\}. \end{aligned} \quad (71)$$

$$\mathcal{F}_{A_0 B_0; A_1 B_1} = \frac{|\mathbf{K}_{A_1}|^3 d\Omega_{\mathbf{K}_{A_1}}}{4 \pi^2 \hbar^2 c^2 n_A n_B [(K_{A_0 B_0})^2 - \mu_A^2 \mu_B^2] [\mathbf{K}_{B_1} (\mathbf{K}_{B_1} \mathbf{K}_{A_1} - K_{A_1} \mathbf{K}_{B_1})]} \frac{e_A^2 e_B^2}{(2 q_{A_0 A_1} - \mu_A^2)^2}, \quad (74)$$

où  $n_A$ ,  $n_B = 1, 2, 3$  suivant le spin 0,  $\frac{\hbar}{2}$  ou  $\hbar$  des corpuscules A et B.

Au moyen des expressions (67), (68), (70) et (71), nous obtenons facilement  $S_{A_0 B_0; A_1 B_1}$  pour les différents cas de spin des particules A et B, celles-ci restant discernables.

**3. Calcul des sections efficaces de diffusion coulombienne.** — Nous introduisons les covariants

$$\left. \begin{aligned} K_{ij} &= -K_i K_j + (\mathbf{K}_i \mathbf{K}_j), \\ q_{ij} &= -K_i K_j + (\mathbf{K}_i \mathbf{K}_j) + \mu_i \mu_j = K_{ij} + \mu_i \mu_j, \\ q_{\bar{ij}} &= K_{ij} - \mu_i \mu_j = q_{ij} - 2 \mu_i \mu_j \end{aligned} \right\} \quad (i, j = A_0, A_1, B_0, B_1); \quad (64)$$

On a notamment

$$q_{ii} = 0, \quad K_{ii} = -\mu_i^2, \quad q_{\bar{ii}} = -2 \mu_i^2. \quad (65)$$

Les relations (38) donnent alors

$$\left. \begin{aligned} q_{A_0 B_0} &= q_{A_1 B_1}, & q_{A_0 A_1} &= q_{B_0 B_1}, & q_{A_0 B_1} &= q_{B_0 A_1}, \\ q_{A_0 A_1} &= q_{A_0 B_0} - q_{A_0 B_1} = K_{A_0 B_0} - K_{A_0 B_1}, \\ q_{A_0 A_1} q_{B_0 B_1} + q_{A_0 B_1} q_{B_0 A_1} - q_{A_0 B_0} q_{A_1 B_1} &= -2 q_{A_0 A_1} q_{A_0 B_1}, \end{aligned} \right\} \quad (66)$$

Nous évaluerons d'abord  $S_{A_0 A_1}^{\lambda \kappa}$  pour les trois cas de spin corpusculaire  $\frac{\hbar}{2}$ , 0 et  $\hbar$ . Dans le cas du corpuscule de spin  $\frac{\hbar}{2}$ , on a

$$S_{A_0 A_1}^{\lambda \kappa} = \frac{\text{Tr}[\Lambda_{A_0} \alpha^\lambda \Lambda_{A_1} \alpha^\kappa]}{4 K_{A_0} K_{A_1}} = \frac{t_{A_0 A_1}^{\lambda \kappa}}{K_{A_0} K_{A_1}} \quad (67)$$

en posant

$$\left. \begin{aligned} t_{ij}^{\lambda \kappa} &= K_i^\lambda K_j^\kappa + K_j^\lambda K_i^\kappa - q_{ij} \delta^{\lambda \kappa} \\ &\quad (i, j = A_0, A_1, B_0, B_1). \end{aligned} \right\} \quad (68)$$

Dans le cas des spins 0 et  $\hbar$ , on a

La section efficace correspondant à la diffusion du corpuscule A dans l'angle solide  $d\Omega_{\mathbf{K}_{A_1}}$  autour de la direction  $\mathbf{K}_{A_1}$ , tandis que le corpuscule B recule dans la direction  $\mathbf{K}_{B_1}$ , a pour expression

$$d\sigma = \mathcal{F}_{A_0 B_0; A_1 B_1} S_{A_0 B_0; A_1 B_1}, \quad (72)$$

où

$$S_{A_0 B_0; A_1 B_1} = K_{A_0} K_{B_0} K_{A_1} K_{B_1} S_{A_0 A_1}^{\lambda \kappa} S_{B_0 B_1}^{\lambda \kappa}, \quad (73)$$

1° Rappelons dans le cas où A et B sont tous deux de spin  $\frac{\hbar}{2}$  l'expression de  $S_{A_0 B_0; A_1 B_1}$

$$\begin{aligned} \left(\frac{\hbar}{2}, \frac{\hbar}{2}\right) S_{A_0 B_0; A_1 B_1} &= t_{A_0 A_1}^{\lambda \kappa} t_{B_0 B_1}^{\lambda \kappa} \\ &= 2 [(K_{A_0 B_0})^2 + (K_{A_0 B_1})^2 + q_{A_0 A_1} (\mu_A^2 + \mu_B^2)]. \end{aligned} \quad (75)$$



2° Pour A et B tous deux de spin 0

$${}_{(00)}S_{A_0B_0;A_1B_1} = \frac{1}{4} [K_{A_0B_0} + K_{A_0B_1}]^2 = \frac{1}{4} [K_{A_0B_0} + K_{B_0A_1}]^2. \quad (76)$$

3° Pour A et B, tous deux de spin  $\hbar$

$$\begin{aligned} (\hbar, \hbar)S_{A_0B_0;A_1B_1} = \frac{1}{4} \left\{ (K_{A_0B_0} + K_{A_0B_1})^2 + \frac{2\bar{q}_{A_0A_1}\bar{q}_{B_0B_1}}{|\mu_A^2|\mu_B^2} [(K_{A_0B_0})^2 + (K_{A_0B_1})^2 + q_{A_0A_1}(\mu_A^2 + \mu_B^2)] \right. \\ \left. - \frac{2\bar{q}_{A_0A_1}}{|\mu_A^2|} [2K_{A_0B_0}K_{A_0B_1} + \mu_B^2 q_{A_0A_1}] - \frac{2\bar{q}_{B_0B_1}}{|\mu_B^2|} [2K_{A_0B_0}K_{A_0B_1} + \mu_A^2 q_{A_0A_1}] \right\}. \quad (77) \end{aligned}$$

4° Pour A de spin 0, B de spin  $\frac{\hbar}{2}$

$$\left(0, \frac{\hbar}{2}\right)S_{A_0B_0;A_1B_1} = 2K_{A_0B_0}K_{A_0B_1} + \mu_A^2 q_{A_0A_1}. \quad (78)$$

5° Pour A de spin  $\frac{\hbar}{2}$ , B de spin  $\frac{\hbar}{2}$

$$\begin{aligned} \left(\frac{\hbar}{2}, \frac{\hbar}{2}\right)S_{A_0B_0;A_1B_1} = \frac{1}{4} \left\{ (K_{A_0}^\lambda + K_{A_1}^\lambda)(K_{A_0}^\lambda + K_{A_1}^\lambda) t_{B_0B_1;\lambda\lambda} \right. \\ \left. - \frac{2\bar{q}_{A_0A_1}}{|\mu_A^2|} t_{A_0A_1}^{\lambda\lambda} t_{B_0B_1;\lambda\lambda} \right\} \\ = 2K_{A_0B_0}K_{A_0B_1} + \mu_A^2 q_{A_0A_1} \\ - \frac{q_{A_0A_1}}{|\mu_A^2|} [(K_{A_0B_0})^2 + (K_{A_0B_1})^2 \\ + q_{A_0A_1}(\mu_A^2 + \mu_B^2)]. \quad (79) \end{aligned}$$

6° Pour A de spin  $\frac{\hbar}{2}$ , B de spin 0

$$\begin{aligned} \left(\frac{\hbar}{2}, 0\right)S_{A_0B_0;A_1B_1} = \frac{1}{4} \left\{ (K_{A_0B_0} + K_{A_0B_1})^2 \right. \\ \left. - \frac{2\bar{q}_{A_0A_1}}{|\mu_A^2|} (2K_{A_0B_0}K_{A_0B_1} + \mu_B^2 q_{A_0A_1}) \right\}. \quad (80) \end{aligned}$$

On voit immédiatement que ces expressions et, par suite, les sections efficaces correspondantes ne sont pas indépendantes.

On a les relations

$$\begin{aligned} (\hbar, \hbar)S = (0, 0)S + \left(\frac{\hbar}{2}, \frac{\hbar}{2}\right)S \frac{q_{A_0A_1}\bar{q}_{B_0B_1}}{4|\mu_A^2|\mu_B^2} \\ - \left(\frac{\hbar}{2}, 0\right)S \frac{q_{A_0A_1}}{2|\mu_A^2|} - \left(0, \frac{\hbar}{2}\right)S \frac{q_{B_0B_1}}{2|\mu_B^2|}, \quad (81) \end{aligned}$$

$$\left(\frac{\hbar}{2}, \frac{\hbar}{2}\right)S = \left(0, \frac{\hbar}{2}\right)S - \left(\frac{\hbar}{2}, \frac{\hbar}{2}\right)S \frac{q_{A_0A_1}}{2|\mu_A^2|}, \quad (82)$$

$$\left(\frac{\hbar}{2}, 0\right)S = (0, 0)S - \left(\frac{\hbar}{2}, 0\right)S \frac{q_{A_0A_1}}{2|\mu_A^2|}. \quad (83)$$

**4. Interactions coulombiennes par des champs mésiques de types scalaires et pseudo-scalaires.** — Dans ces interactions, les éléments de matrices d'émission ou d'absorption sont formés au moyen des invariants et des pseudo-invariants de la théorie des corpuscules considérés.

On voit facilement qu'il existe dans le cadre de

la théorie des corpuscules de spin 0 et  $\hbar$  les deux invariants représentés par les matrices

$$\omega_1 = \alpha_k^{(1)}\alpha_k^{(2)}, \quad \omega_3 = \alpha_b^{(1)}\alpha_b^{(2)} \quad (84)$$

et dans le cas du spin  $\hbar$  seulement, le pseudo-invariant représenté par la matrice

$$\omega_2 = \frac{1}{2} [\alpha_k^{(1)}\alpha_b^{(2)} + \alpha_b^{(1)}\alpha_k^{(2)}]. \quad (85)$$

On démontre pour les champs scalaires associés à des vecteurs ou à des pseudovecteurs des théorèmes d'équivalences analogues à ceux que l'on rencontre dans la théorie des interactions scalaires et pseudo-scalaires des corpuscules de spin  $\frac{\hbar}{2}$ .

On peut donc ne considérer que les interactions associées aux invariants et pseudo-invariants  $\omega_i$  ( $i = 1, 2, 3$ ).

On obtient alors immédiatement les éléments de matrice de diffusion coulombienne par un champ mésique neutre, scalaire ou pseudoscalaire dans le cas des particules discernables

$$S_A S_B \frac{(u_{A_0}^* \omega_i^A u_{A_1})(u_{B_0}^* \omega_i^B u_{B_1})}{2q_{A_0A_1} - \mu_0^2} \quad (86)$$

et dans le cas d'indiscernabilité entre  $A_1$  et  $B_1$  ( $\mu_A = \mu_B$ )

$$S_A S_B \left[ \frac{(u_{A_0}^* \omega_i u_{A_1})(u_{B_0}^* \omega_i^B u_{B_1})}{2q_{A_0A_1} - \mu_0^2} - \frac{(u_{A_0}^* \omega_i u_{B_1})(u_{A_1}^* \omega_i u_{B_0})}{2q_{A_0B_1} - \mu_0^2} \right]. \quad (87)$$

Le calcul des sections efficaces de diffusion se ramène donc à l'évaluation des expressions de la forme

$$\begin{aligned} t_{A_0A_1}^{(i)} = (u_{A_0}^* \omega_i u_{A_1})(u_{A_1}^* \omega_i u_{A_0}), \\ t_{A_0B_0A_1B_1}^{(i)} = (u_{A_0}^* \omega_i u_{A_1})(u_{A_1}^* \omega_i u_{B_0})(u_{B_0}^* \omega_i u_{B_1})(u_{B_1}^* \omega_i u_{A_0}). \end{aligned} \quad (88)$$

Dans le cas du spin  $\frac{\hbar}{2}$ , on a les expressions bien connues

$$\begin{aligned} \frac{\hbar}{2} S_{A_0A_1}^{(i)} = K_{A_0} K_{A_1} t_{A_0A_1}^{(i)} = \frac{1}{4} \text{Tr}(\Lambda_{A_0} \omega_i \Lambda_{A_1} \omega_i) \\ = \begin{cases} -q_{A_0A_1} & \text{pour } \omega_i = \alpha_i \\ & (\text{champ scalaire}), \\ -q_{A_0A_1} & \text{pour } \omega_i = \alpha_3 \\ & (\text{champ pseudoscalaire}). \end{cases} \quad (89) \end{aligned}$$



$$\begin{aligned}
\frac{1}{2} S_{A_0 B_0 A_1 B_1}^{(i)} &= K_{A_0} K_{B_0} K_{A_1} K_{B_1} t_{A_0 B_0 A_1 B_1}^{(i)} = \frac{1}{16} \text{Tr} [\Lambda_{A_0} \omega_i \Lambda_{A_1} \omega_i \Lambda_{B_0} \omega_i \Lambda_{B_1} \omega_i] \\
&= \begin{cases} -\frac{1}{2} [q_{A_0 A_1} q_{A_0 B_1} + 2\mu_A^2 q_{A_0 B_0}] & \text{pour } \omega_i = \alpha_1, \\ -\frac{1}{2} q_{A_0 A_1} q_{A_0 B_1} & \text{pour } \omega_i = \alpha_3. \end{cases} \quad (90)
\end{aligned}$$

Dans le cas des spins 0 et  $\hbar$ , on a

$$\begin{aligned}
\frac{1}{2} S_{A_0 A_1}^{(i)} &= K_{A_0} K_{A_1} t_{A_0 A_1}^{(i)} = \frac{1}{16\mu_A^2} \text{Tr} [(\Lambda_{A_0} \omega_i \Lambda_{A_1} \omega_i) \eta_i^\pm] \\
&= \frac{1}{4\mu_A^2} \begin{cases} (q_{A_0 A_1})^2 (2 \pm 1) & (i=1; \text{premier invariant, champ scalaire}), \\ q_{A_0 A_1} q_{A_0 A_1} (1 \pm 1) & (i=2; \text{pseudo-invariant, champ pseudoscalaire}), \\ (q_{A_0 A_1})^2 (2 \pm 1) & (i=3; \text{second invariant, champ scalaire}). \end{cases} \quad (91)
\end{aligned}$$

On vérifie sur la seconde de ces expressions l'impossibilité que nous avons déjà signalée d'un couplage pseudoscalaire direct entre un champ pseudoscalaire et une particule de spin 0 (de nature scalaire ou pseudoscalaire).

Dans le cas d'indiscernabilité entre A et B ( $\mu_A = \mu_B$ ), le calcul des termes croisés conduit aux expressions

$$\begin{aligned}
\frac{1}{2} S_{A_0 B_0 A_1 B_1}^{(i)} &= K_{A_0} K_{B_0} K_{A_1} K_{B_1} t_{A_0 B_0 A_1 B_1}^{(i)} \\
&= \frac{1}{(16)^2 \mu_A^4} \text{Tr} \{ (\Lambda_{A_0} \omega_i \Lambda_{A_1} \omega_i \Lambda_{B_0} \omega_i \Lambda_{B_1} \omega_i) \eta_i^\pm \}. \quad (92)
\end{aligned}$$

On obtient ainsi :

1° Dans le cas du champ scalaire

$$\begin{aligned}
\frac{1}{2} S_{A_0 B_0 A_1 B_1}^{(i)} &= \frac{1}{16\mu_A^4} [(q_{A_0 A_1} q_{B_0 B_1} + q_{A_0 B_1} q_{B_0 A_1} - q_{A_0 B_0} q_{A_1 B_1})^2 \\
&\quad - q_{A_0 A_1} q_{A_0 B_1} q_{B_0 A_1} q_{B_0 B_1}] \\
&= \frac{1}{16\mu_A^4} \{ [(q_{A_0 A_1})^2 + (q_{A_0 B_1})^2 - (q_{A_0 B_0})^2] \\
&\quad - (q_{A_0 A_1} q_{A_0 B_1})^2 \}, \quad (93)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{1}{2} S_{A_0 B_0 A_1 B_1}^{(1)} &= \frac{1}{16\mu_A^4} q_{A_0 A_1} q_{A_0 B_1} q_{B_0 A_1} q_{B_0 B_1} \\
&= \frac{1}{16\mu_A^4} (q_{A_0 A_1} q_{A_0 B_1})^2, \quad (94)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{1}{2} S_{A_0 B_0 A_1 B_1}^{(3)} &= \frac{1}{16\mu_A^4} 3 (q_{A_0 A_1} q_{A_0 B_1})^2 \\
\frac{1}{2} S_{A_0 B_0 A_1 B_1}^{(2)} &= \frac{1}{16\mu_A^4} (q_{A_0 A_1} q_{A_0 B_1})^2. \quad (95)
\end{aligned}$$

2° Dans le cas du champ pseudoscalaire

$$\begin{aligned}
\frac{1}{2} S_{A_0 B_0 A_1 B_1}^{(2)} &= \frac{1}{32\mu_A^4} [4 (q_{A_0 A_1} q_{A_0 B_1})^2 \\
&\quad + (\varepsilon_{\mu\nu\rho\sigma} K_{A_0}^\mu K_{A_1}^\nu K_{B_0}^\rho K_{B_1}^\sigma)^2]. \quad (96)
\end{aligned}$$

Au moyen de ces diverses expressions, on construit sans difficultés les formules globales donnant les sections efficaces de diffusion coulombienne par un champ mésique scalaire ou pseudoscalaire entre deux corpuscules A et B dont les spins sont 0,  $\frac{\hbar}{2}$  ou  $\hbar$ .

Manuscrit reçu le 17 novembre 1952.

#### BIBLIOGRAPHIE.

- [1] PETIAU G. — *Thèse*, Paris, 1936; *Mém. Acad. Sc. Belgique*, Paris, 1934; Une nouvelle théorie de la lumière, t. I, 1936, **16**, Paris, 1940.  
[2] DE BROGLIE L. — Une nouvelle conception de la lumière,  
[3] PETIAU G. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **234**, 1534.  
[4] PETIAU G. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **234**, 1601 et 1749.



# CALCUL GÉNÉRAL DE LA RELATION PARCOURS-ÉNERGIE DES PARTICULES DANS LES ÉMULSIONS OU UN MILIEU RALENTISSEUR QUELCONQUE.

## APPLICATION NUMÉRIQUE A L'ÉMULSION ILFORD C<sub>2</sub>

Par LÉOPOLD VIGNERON,

Laboratoire de Chimie Nucléaire du Collège de France, Paris.

**Sommaire.** — Seule une formule à bases théoriques permet d'extrapoler la relation parcours-énergie au delà du domaine des déterminations expérimentales; des calculs antérieurs de l'auteur [3], [4], [6] sont ici repris et améliorés.

Pour  $E < 1$  MeV, les mesures empiriques de Warshaw permettent d'obtenir la perte d'énergie. Pour des énergies supérieures, il est démontré qu'elle s'exprime théoriquement en fonction de deux paramètres  $\alpha$  et  $\alpha\beta$ , constants pour  $E > 13$  MeV et dont la variation est calculable pour  $13 \text{ MeV} > E > 1 \text{ MeV}$ . Des tables de fonctions auxiliaires sont calculées.

$R = f(E)$ , pour un milieu ralentisseur quelconque s'obtient alors par intégration; trois points expérimentaux  $R - E$  suffisent pour fournir les constantes nécessaires au calcul.

Une table  $R = f(E)$  est calculée depuis  $E = 0,1$  MeV jusque  $E = 220$  MeV, dans le cas : émulsion Ilford C<sub>2</sub>, protons. Des formules de transformation simples permettent de passer au cas des autres particules.

L'accord avec l'expérience est parfait.

### 1. Notations et constantes physiques utilisées au cours de l'article :

$E$ , énergie cinétique de la particule rapide;

$M$ , masse au repos de la particule rapide;

$v$ , vitesse de la particule rapide;

$c$ , vitesse de la lumière;

$\beta$ , rapport  $\frac{v}{c}$ ;

$z$ , nombre de charges portées par la particule rapide;

$e$ , charge u. e. s. de l'électron  $= 4,80217 \cdot 10^{-10}$  [14];

$m$ , masse au repos de l'électron;

$\frac{M(\text{proton})}{m(\text{électron})} = 1836,093$  [14];

$mc^2 = 0,5109669 \text{ MeV}$ ;  $Mc^2(\text{proton}) = 938,187 \text{ MeV}$  [14];

$1 \text{ MeV} = 1,601844 \cdot 10^{-6} \text{ erg}$  [14];

Nombre d'Avogadro, échelle chimique

$$\alpha = 6,02402 \cdot 10^{23} \quad [14];$$

On peut, dans l'émulsion ou tout autre mélange, considérer séparément les différents éléments chimiques.

On notera :

$i$ , nom d'une espèce chimique;

$Z_i$ , numéro atomique des atomes  $i$ ;

$a_i$ , masse atomique (échelle chimique);

$m_i$ , masse, en grammes, de l'élément  $i$  dans un centimètre cube de matière;

$n_i = \frac{m_i}{a_i}$ , nombre d'atomes-grammes  $i$  dans un centimètre cube de matière;

$N_i = \alpha n_i$ , nombre d'atomes individuels  $i$  dans un centimètre cube;

$n = \sum n_i$ , nombre total d'atomes-grammes des divers éléments dans  $1 \text{ cm}^3$ ;

$N = \sum N_i = \alpha n$ , nombre total d'atomes des divers éléments dans  $1 \text{ cm}^3$ ;

$N_i Z_i$ , nombre total d'électrons des atomes  $i$  dans un centimètre cube;

$n_i Z_i$ , nombre d'« électrons-grammes » des électrons des atomes  $i$  dans  $1 \text{ cm}^3$ ;

$Z = \frac{\sum N_i Z_i}{N} = \frac{\sum n_i z_i}{n}$  = «  $Z$  moyen » de l'émulsion;

$NZ = \sum N_i Z_i$ , nombre total des électrons, pour tous les éléments, dans  $1 \text{ cm}^3$  de matière;

$nZ = \sum n_i Z_i$ , nombre total d'« électrons-grammes », pour tous les éléments, dans  $1 \text{ cm}^3$  de matière.

Les électrons des divers constituants de l'émulsion peuvent être classés en différentes catégories suivant l'atome chimique et la place dans cet atome (par exemple, une des catégories contiendra tous les électrons  $L_2$  de tous les atomes de brome). On notera :

1, 2, 3, ..., numéro des catégories;

$A, B, C, \dots$ , nombres vrais des électrons, dans chaque catégorie, par centimètre cube;

$A', B', C', \dots$ , nombres « efficaces » des électrons, dans chaque catégorie, par centimètre cube;

$a, b, c, \dots$ , nombres vrais, exprimés en « électrons-grammes » par centimètre cube, pour les catégories 1, 2, 3, ...;



$a', b', c', \dots$ , nombres « efficaces » correspondants, en « électrons-grammes » par centimètre cube, pour les catégories 1, 2, 3, ...;

$I_1, I_2, I_3, \dots$ , potentiels d'ionisation moyens pour les catégories 1, 2, 3, ...;

$\alpha, \beta, \gamma, \dots$ , logarithmes décimaux de  $I_1, I_2, I_3, \dots$  (les potentiels étant exprimés en électrons-volts).

Les numéros des catégories sont supposés, ce qui n'est pas restrictif, choisis de telle façon que

$$I_1 > I_2 > I_3 > \dots,$$

ce qui entraîne

$$\alpha > \beta > \gamma > \dots$$

## 2. Rappel de nos calculs précédents [3], [4], [6], intérêt d'un nouveau calcul.

2.1. RÉSULTATS EMPIRIQUES ET PREMIER CALCUL DANS L'ÉMULSION, POUR LES ÉNERGIES BASSES ET MOYENNES. — Différents auteurs [1], [8], [9], [10], [11], [13], [29], [30], [31], ont mesuré expérimentalement le parcours pour différentes énergies connues d'une particule et, entre les points expérimentaux  $R$ - $E$  ainsi obtenus, ils ont interpolé graphiquement une courbe parcours-énergie  $R = R(E)$ .

Pour qu'une telle interpolation empirique soit précise, de très nombreux points expérimentaux sont nécessaires; il n'est pas légitime d'extrapoler hors du domaine d'énergie où ils sont situés.

On a constaté empiriquement, sans que cela soit justifié théoriquement, dans l'air [12], dans l'émulsion [13], et cela est sans doute valable dans un milieu quelconque, que la relation parcours-énergie est approximativement de la forme

$$R = k E^h. \quad (1)$$

En fait,  $k$  et  $h$  varient lentement avec l'énergie (on le constatera par exemple, plus loin, sur la figure 2); la formule (1) ne permet d'interpoler avec précision que si les points expérimentaux  $R$ - $E$  ne sont pas trop espacés, elle ne permet pas d'extrapoler bien loin hors du domaine où ils se trouvent.

Dans un premier travail, en collaboration avec M. Bogaardt [3], [4], j'ai montré qu'il est bien préférable d'employer une formule ayant des bases théoriques. Cela présente les avantages suivants :

1° *Interpolations meilleures.* — La forme de la courbe étant mieux représentée, on peut « enjamber » des intervalles plus grands entre les points expérimentaux dont le nombre peut être fortement réduit.

2° *Possibilité d'extrapoler valablement.*

3° *En traitant le problème directement dans le ralentisseur considéré, on a plus de précision* que si on passe par l'intermédiaire inutile de la relation  $R=f(E)$  dans l'air, comme d'autres auteurs [15], [16] l'ont fait.

4° *On peut se borner à faire le calcul dans le cas*

des protons en remarquant que : à vitesses égales de deux particules, pour une même épaisseur de matière traversée, les pertes d'énergie sont proportionnelles aux carrés des charges [18]. Voici les formules de transformation [4] :

$$R(1,9985 E)_{\text{deutons}} = 1,9985 R(E)_{\text{protons}}, \quad (2)$$

$$R(2,9827 E)_{\text{tritons}} = 2,9827 R(E)_{\text{protons}}. \quad (2 \text{ bis})$$

$$R(3,971 E)_{\alpha} = 0,9928 R(E)_{\text{protons}} + \text{const.} \quad (2 \text{ ter})$$

La formule (2 ter) ne convient plus pour  $E_{\alpha} < 3$  MeV. La particule  $\alpha$  capture et perd alternativement un électron, sa charge moyenne, inférieure à 2, est mal connue. Il faut alors établir empiriquement la relation parcours-énergie des  $\alpha$  qui ne peut plus être déduite de celle des protons. Incidemment, nous avons déjà signalé [4], [5], une anomalie encore inexpliquée dans la forme des courbes; de nouvelles expériences seraient souhaitables, pour les énergies  $\alpha$  inférieures à 3 MeV (parcours  $\alpha$  inférieurs à  $10 \mu$ ).

La formule (2 ter) convient pour  $E_{\alpha} > 3$  MeV, la charge de la particule  $\alpha$  reste alors égale à 2. Possédant la relation parcours-énergie des protons, un seul point expérimental  $E_{\alpha} - R_{\alpha}$  suffit, en principe à fixer le terme constant de la formule (2 ter). Dans l'émulsion Ilford C<sub>2</sub>, avec M. Bogaardt [4], nous avons constaté que ce terme est voisin de  $+0,4 \mu$ . Quand les parcours dépassent une centaine de microns, il peut être négligé.

Nous avons récemment constaté [7] que la courbe calculée dans notre premier travail [4] s'est trouvée confirmée par des points expérimentaux postérieurement déterminés, dans la zone  $E < 0,6$  MeV [19] et dans la zone  $8 \text{ MeV} > E > 5 \text{ MeV}$  [10], [11].

Il est légitime d'admettre que les contributions au ralentissement des différents constituants de l'émulsion sont additives;  $p_i(E)$  étant une fonction caractéristique de l'élément chimique  $i$ , pour un ralentisseur quelconque, on a

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_i = \sum_i \left(-\frac{dE}{dx}\right)_i = \sum_i N_i p_i(E) = f(E). \quad (3)$$

Bogaardt et moi avons utilisé les potentiels de Mano pour les introduire dans la formule de Bethe [18]

$$p_i(E) = \frac{4\pi e^4 z^2 Z_i}{mv^2} [\text{Log } 2mv^2 - \text{Log } I_i - C_K(i)]. \quad (5)$$

Mano [17] a déterminé ses potentiels avec des rayons  $\alpha$  d'énergie comprise entre 2 et 8,8 MeV, ce qui, pour des protons, correspond à

$$0,5 \text{ MeV} < E < 2,2 \text{ MeV}.$$

Il suppose que tous les électrons participent au ralentissement, ce qui n'est pas tout à fait correct, puisque, dans cette région, la particule est plus lente que les électrons  $K$  et  $L$  de l'argent et du brome. Il commet donc une erreur difficile à chiffrer



sur  $I_b$ , cette erreur « compensant l'erreur sur la formule ».

Il est tout à fait normal que cette compensation se retrouve dans le calcul sur l'émulsion : en fait, notre calcul restait correct [4], [6] jusque 8 MeV, au delà de la zone des expériences de Mano. En allant bien au delà, *tandis que les potentiels resteraient erronés, la formule devenant de plus en plus exacte, la compensation ne jouerait plus.*

On pourrait alors penser à utiliser des potentiels d'ionisation obtenus à l'aide d'expériences de ralentissement effectuées dans la zone des grandes énergies [29]. Malheureusement (*voir plus loin § 7.5*), ces valeurs ne semblent pas, ce qui serait normal, préférables à celles de Mano.

2.2. CALCUL, DANS L'ÉMULSION, POUR LES GRANDES ÉNERGIES. — *Obligé ainsi de renoncer aux potentiels  $I_b$ , j'ai, dans un deuxième calcul [6], montré qu'aux grandes énergies —  $\frac{dE^2}{dx}$  s'exprime en fonction de deux paramètres constants  $\alpha$  et  $b$ .*

La table publiée [6] diverge très légèrement, pour 5 MeV  $< E < 10$  MeV des résultats expérimentaux publiés ultérieurement [10], [11], elle reste correcte au delà de 10 MeV.

2.3. CALCUL GÉNÉRAL PROPOSÉ. — *Je me propose ici d'étendre ce calcul vers les basses énergies en calculant les corrections [ $\alpha - \alpha_\infty$ ], [ $(\alpha b) - (\alpha b)_\infty$ ] qu'il convient d'apporter au paramètre  $\alpha$  et au produit  $\alpha b$  quand l'énergie n'est pas suffisamment élevée et que j'avais négligées dans mon deuxième calcul.*

Néanmoins, on verra plus loin que le calcul de ces corrections repose sur des théories approchées et que l'imprécision sur les corrections croît avec celles-ci. Je ne pense donc pas qu'il y ait lieu de déterminer —  $\frac{dE^2}{dx}$  par le calcul au-dessous de 1 MeV.

Je reproduis (*voir plus loin, table V*) les  $p_i(E)$  calculés avec Bogaardt [4], pour  $E < 0,45$  MeV, d'après les résultats d'expérimentateurs [20], [21], [18]. Connaissant la composition du ralentisseur, la formule (3) donne alors —  $\frac{dE}{dx}$ , d'où

$$-\frac{dE^2}{dx} = -2E \frac{dE}{dx}.$$

Il reste un « trou » entre la partie empirique ( $E < 0,45$  MeV) et la partie calculée ( $E > 1$  MeV) de la fonction —  $\frac{dE^2}{dx}$ . On verra plus loin qu'elle s'écarte peu d'une fonction linéaire en  $\log E^2$  : en traçant son graphique sur papier semi-logarithmique, il n'y a pratiquement qu'une façon de franchir le « trou » par un « pont » au moyen d'une interpolation graphique. On sera ainsi en possession de la fonction —  $\frac{dE^2}{dx}$  quelle que soit l'énergie.

En principe,  $\alpha_\infty$  est connu, puisqu'il ne dépend

que de la composition chimique de l'émulsion [6]. Néanmoins, il sera empiriquement ajusté, pour deux raisons :

a. On verra au paragraphe 7.4, qu'il semble bien que le fabricant ne donne pas avec toute la précision souhaitable la composition de l'émulsion Ilford C<sub>2</sub>;

b. Les corrections calculées plus loin sur  $\alpha_\infty$  et  $(\alpha b)_\infty$  n'étant qu'approchées, ajuster le paramètre  $\alpha_\infty$ , et peut-être le fausser ainsi très légèrement, peut compenser l'imprécision sur les corrections et conduire à un meilleur accord des calculs et de l'expérience.

Le deuxième paramètre  $b_\infty$  est lié aux potentiels d'ionisation, par l'intermédiaire d'une quantité que j'ai définie comme le potentiel moyen d'ionisation pour l'ensemble de l'émulsion [6]. Mais, puisqu'il y a lieu de renoncer aux potentiels  $I_b$ , le paramètre  $b_\infty$ , ou le produit  $(\alpha b)_\infty$  doit être ajusté par des expériences R-E portant sur l'émulsion.

Compte tenu de la constante d'intégration qui s'introduit dans les calculs et des deux paramètres à ajuster, *il suffit maintenant, en principe, de trois points expérimentaux R-E déterminés avec soin dans un ralentisseur pour avoir toute la courbe parcours-énergie.*

Il y aurait lieu de choisir ces points espacés, l'un aux environs de 1 MeV, l'autre à énergie aussi élevée que possible, le troisième pour une énergie qui pourrait être la moyenne géométrique des deux premières. Deux ou trois points de contrôle ne seraient pas inutiles.

Il est absolument sans objet de déterminer des dizaines de points expérimentaux R-E, comme cela a été fait dans le cas de l'émulsion Ilford C<sub>2</sub>. *Dans le cas d'un nouveau ralentisseur, l'effort expérimental, le temps mort pour faire ces expériences, peuvent désormais être épargnés d'une façon considérable.*

### 3. Théorie simplifiée du ralentissement aux grandes énergies et aux énergies moyennes.

On peut considérer que les contributions au ralentissement sont additives et ne sont pas perturbées par l'existence des liaisons chimiques entre les atomes.

3.1. FORMULES DU RALENTISSEMENT AUX GRANDES ÉNERGIES. — Quand une particule rapide traverse la matière, un électron, qui se trouvait primitivement sur une orbite stable peut, soit être excité sans quitter l'atome d'origine et passer sur un niveau quantifié de l'atome (la transition n'est possible que si le nombre quantique  $j$  varie de  $\pm 1$  et si l'état final est libre au sens du principe d'exclusion de Pauli), soit être projeté hors de l'atome avec une vitesse initiale non nulle (dans ce cas, l'énergie empruntée à la particule n'est pas quantifiée).



Pour chacune des catégories d'électrons, 1, 2, 3, ..., on peut définir un potentiel moyen d'ionisation. La contribution au ralentissement de l'ensemble des électrons de la catégorie 1 est donnée par une formule analogue à la formule relativiste de Bethe [18]

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_1 = \frac{4\pi e^4 z^2}{mv^2} A \times [\text{Log } 2mv^2 - \text{Log } I_1 - \text{Log}(1-\beta^2) - \beta^2]. \quad (6)$$

Chaque atome  $i$  contient

2 électrons  $K_i$  + 2 électrons  $L_{1i}$  + 6 électrons  $L_{2i}$  + ... ,

au total  $Z_i$  électrons. Définissons le potentiel moyen d'ionisation  $I_i$  d'un atome  $i$  par l'équation

$$2 \text{Log } I_{K_i} + 2 \text{Log } I_{L_{1i}} + 6 \text{Log } I_{L_{2i}} + \dots \\ = (2 + 2 + 6 + \dots) \text{Log } I_i = Z_i \text{Log } I_i. \quad (7)$$

Sommons les contributions partielles des couches électroniques appartenant aux atomes  $i$ ; la contribution de l'ensemble des atomes  $i$  au ralentissement s'écrit

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_i = \frac{4\pi e^4 z^2}{mv^2} N_i Z_i \times [\text{Log } 2mv^2 - \text{Log } I_i - \text{Log}(1-\beta^2) - \beta^2]. \quad (8)$$

Définissons, pour l'ensemble de l'émulsion, un potentiel moyen d'ionisation  $I$ , par une des deux formules suivantes, dont l'identité est facile à vérifier :

$$A \text{Log } I_1 + B \text{Log } I_2 + C \text{Log } I_3 + \dots \\ = (A + B + C + \dots) \text{Log } I, \quad (9)$$

$$\sum_i (N_i Z_i \text{Log } I_i) = \left(\sum_i N_i Z_i\right) \text{Log } I = NZ \text{Log } I. \quad (10)$$

Partant, soit des contributions classées par couches électroniques, soit des contributions déjà sommées par élément, le ralentissement total dans l'émulsion est donné par une des deux formules équivalentes suivantes :

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi e^4 z^2}{mv^2} (A + B + C + \dots) \times [\text{Log } 2mv^2 - \text{Log } I - \text{Log}(1-\beta^2) - \beta^2], \quad (11)$$

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi e^4 z^2}{mv^2} NZ \times [\text{Log } 2mv^2 - \text{Log } I - \text{Log}(1-\beta^2) - \beta^2]. \quad (12)$$

Il y a identité de formulation entre la formule (12) qui exprime le ralentissement par un mélange quasi-homogène, tel que l'émulsion, ou un composé chimique, et la formule (8) qui s'applique à un élément pur. Cela n'indique pas que l'émulsion soit, au point de vue du ralentissement, identique à un des corps simples existants. Nous verrons ainsi au paragraphe 7.1 que, pour l'émulsion Ilford C<sub>2</sub>, on aboutit à

$$Z_{\text{moy}} = 13,26 \quad \text{et} \quad I_{\text{moy}} \sim 330 \text{ eV},$$

tandis que Mano [17] indique, pour Al ( $Z = 13$ ),  $I \sim 155$  eV, et pour Si ( $Z = 14$ ),  $I \sim 165$  eV.

3.2. CAS DES ÉNERGIES MOYENNES. — Négligeant les corrections relativistes, la formule (6) n'assigne une valeur positive à la contribution des électrons de la catégorie 1 que si  $2mv^2$  est supérieur à  $I_1$ , c'est-à-dire si  $E = \frac{1}{2} Mv^2$  est supérieur à  $\frac{4mI_1}{M}$ .

Une contribution négative est absurde.

En première approximation, nous supposons donc ce qui suit :

1° La formule (6) représente correctement le ralentissement tant que l'énergie des protons est supérieure au seuil

$$E_{P1} = \frac{M}{4m} I_1 = 459 I_1. \quad (13)$$

2° Les électrons de la catégorie 1 « cessent brusquement de participer au ralentissement » si l'énergie de la particule qui traverse la matière tombe au-dessous de  $E_{P1}$ .

Par exemple, si  $E_{P1} > E > E_{P2}$ , les électrons des catégories 1 et 2 ne participent plus au ralentissement, tandis que toutes les autres catégories continuent à y participer. Il faut donc remplacer  $A$  et  $B$  par zéro dans les formules du paragraphe précédent.

On peut définir, pour l'ensemble de l'émulsion, un potentiel moyen  $I'$ , relatif aux catégories qui restent en jeu, en faisant  $A = 0$ ,  $B = 0$  dans la formule (9). On a

$$C \text{Log } I_3 + D \text{Log } I_4 + \dots = (C + D + \dots) \text{Log } I'. \quad (14)$$

Pour la contribution totale de l'émulsion, la formule (11) doit être remplacée par

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi e^4 z^2}{mv^2} (C + D + \dots) \times [\text{Log } 2mv^2 - \text{Log } I' - \text{Log}(1-\beta^2) - \beta^2]. \quad (15)$$

N. B. — Bien que nous ne nous en servions pas ultérieurement, signalons que l'additivité des contributions classées par élément est toujours vérifiée. Il y aurait lieu de remplacer  $Z_i$  par  $Z'_i < Z_i$  et  $I'_i$  par  $I'_i \neq I_i$ , pour les éléments dont certaines couches électroniques ne participent plus au ralentissement.

#### 4. Calcul par intégration de la relation parcours-énergie dans le cas de la théorie simplifiée du ralentissement.

4.1. INTRODUCTION DE FONCTIONS AUXILIAIRES  $\varepsilon(E^2)$ ,  $\varepsilon'(E^2)$ ,  $\psi(E^2)$ . — Rappelons que

$$\text{Log } y = 2,302585 \log y;$$

rappelons aussi l'expression relativiste de l'énergie cinétique

$$E = Mc^2 \left[ (1 - \beta^2)^{-\frac{1}{2}} - 1 \right]. \quad (16)$$



Les formules (17), (18), (19) définissent des fonctions de  $E$ , qui seront utiles dans le calcul ultérieur

$$\varepsilon = \frac{2E}{Mv^2} - 1, \quad (17)$$

$$\varepsilon' = \log_{10}[(1 + \varepsilon)(1 - \beta^2)] + \frac{\beta^2}{2,302585}, \quad (18)$$

$$\psi = (1 + \varepsilon)(\log_{10} E - \varepsilon'). \quad (19)$$

A l'aide de ces formules, dans le cas où la particule rapide est un proton, j'ai calculé et je donne plus loin dans la table I, les valeurs numériques des fonctions  $\varepsilon$ ,  $\varepsilon'$ ,  $\varphi$ .

On peut remarquer que, jusqu'à 10 MeV, dans le cas des protons, on pourrait se contenter des approximations suivantes :

$$\varepsilon = 1,600 \cdot 10^{-3} E \quad (\text{en MeV}), \quad (20)$$

$$\varepsilon' = 6,850 \cdot 10^{-4} E \quad (\text{en MeV}). \quad (21)$$

On peut aussi indiquer que, la particule étant ou non un proton, voici les développements en série de  $\varepsilon$  et  $\varepsilon'$

$$\varepsilon = \frac{3}{4}\beta^2 + \frac{5}{8}\beta^4 + \frac{35}{64}\beta^6 + \frac{63}{128}\beta^8 + \dots, \quad (22)$$

$$\varepsilon' = 0,43429 \left[ \frac{3}{4}\beta^2 - \frac{5}{32}\beta^4 - \frac{11}{96}\beta^6 - \frac{35}{1024}\beta^8 + \dots \right]. \quad (23)$$

4.2. INTRODUCTION DE NOTATIONS ABRÉGÉES. — Pour aérer le calcul, nous noterons  $a$  et  $b$  les paramètres suivants :

$$a = 2,302585(4\pi e^4 z^2) \frac{M}{m} (A + B + C + D + \dots), \quad (24)$$

$$b = -\log_{10} \left( \frac{M}{4m} \right) - \log_{10} I. \quad (25)$$

En vue d'applications numériques, il est commode d'utiliser le système pratique suivant :

Énergie de la particule, en mégaelectrons-volts; potentiels d'ionisation, en électrons-volts; distances, en microns; logarithmes décimaux; nombres  $a$ ,  $b$ ,  $c$ , ..., en électrons-grammes au lieu de  $A$ ,  $B$ ,  $C$ , ..., nombres vrais des électrons des catégories 1, 2, 3, ...

Dans ces conditions, et la particule rapide étant supposée être un proton, il vient

$$a_{\text{prat}} = 6,6331 \cdot 10^{-2}(a + b + c + d + \dots), \quad (26)$$

$$b_{\text{prat}} = 3,33817 - \log I, \quad (27)$$

$$(ab)_{\text{prat}} = 6,6331 \cdot 10^{-2} [ a(3,33817 - \alpha) + b(3,33817 - \beta) + c(3,33817 - \gamma) + \dots ]. \quad (28)$$

4.3. TRANSFORMATION ET INTÉGRATION DE L'ÉQUATION (11). — Compte tenu des notations abrégées introduites aux paragraphes 4.1 et 4.2, il est facile de vérifier que l'équation (11) est équivalente à l'une ou l'autre des équations suivantes :

$$-\frac{dE^2}{dx} = a(1 + \varepsilon)(\log_{10} E + b - \varepsilon') = g(E^2), \quad (29)$$

$$-\frac{dE^2}{dx} = a\psi(E^2) + ab(1 + \varepsilon) = g(E^2). \quad (30)$$

Une intégration donne alors le parcours en fonction de  $E^2$

$$R(E^2) = R(E_0^2) + \int_{E_0^2}^{E^2} \frac{1}{g(E^2)} dE^2. \quad (31)$$

4.4. CAS DES ÉNERGIES MOYENNES. — Quand on se trouve dans la zone des énergies moyennes, certaines catégories d'électrons, dans l'approximation admise au paragraphe 3.2, ne participent pas au ralentissement.

Les formules (29), (30), (31) restent alors valables, à condition de remplacer par zéro, dans les formules (9), (26), (27), (28), les nombres  $a$ ,  $b$ , ... des électrons des catégories qui ne participent plus au ralentissement.

On voit ainsi qu'aux grandes énergies, les paramètres  $a$ ,  $b$  et leur produit  $(ab)$  restent constants; l'énergie décroissant, chaque fois qu'on franchit un seuil,  $a$  diminue et  $b$  augmente et ces paramètres gardent une valeur fixe jusqu'à ce que, l'énergie décroissant encore, un nouveau seuil soit rencontré.

Par exemple, si l'énergie est comprise entre  $E_p$ , et  $E_{p_3}$ , les catégories 1 et 2 se trouvant exclues du ralentissement, en se reportant aux formules (26) et (28), on voit que

$$a_{\infty} - a = 6,6331 \cdot 10^{-2}(a + b). \quad (32)$$

$$(ab)_{\infty} - (ab) = 6,6331 \cdot 10^{-2} \times [a(3,33817 - \alpha) + b(3,33817 - \beta)]. \quad (33)$$

4.5. ALLURE DE LA FONCTION  $\frac{dE^2}{dx}$ . — Sur la

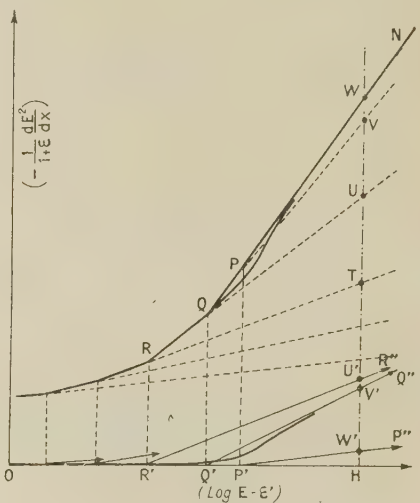


Fig. 1.

figure 1, j'ai schématiquement porté la fonction  $-\frac{1}{1 + \varepsilon} \frac{dE^2}{dx}$  en fonction de  $(\log E - \varepsilon')$ .

La contribution des électrons  $K$  de l'iode est figurée par le segment  $OP'$  (contribution nulle



au-dessous du seuil), puis par le segment P'P'', OQ'Q'', OR'R'' figurent les contributions des électrons Ag<sub>K</sub> et Br<sub>K</sub>.

L'additivité des différentes contributions s'exprime, sur la figure 1, par les égalités

$$TU = HU', \quad UV = HV', \quad VW = HW'. \quad (34)$$

Le graphique relatif à l'ensemble de l'émulsion est formé d'une suite de segments de droites RQ, QP, PN, ...; sur chacun d'eux, *a* et *b* gardent des valeurs fixes. Le segment PN peut être prolongé indéfiniment du côté des grandes énergies, puisque toutes les catégories d'électrons participent alors au ralentissement.

## 5. Améliorations à la théorie du ralentissement.

5.1. INTRODUCTION DES NOMBRES EFFICACES D'ÉLECTRONS. — Pour chaque transition, à partir d'un niveau, on définit une force d'oscillateur *f* suivant l'état où aboutit l'électron (*f* = différence d'énergie × probabilité de transition). A chaque couche électronique correspond un facteur *F* = somme des *f* relatifs aux transitions partant de ce niveau.

Dans la théorie du ralentissement, un électron doit être compté pour  $\frac{1+F}{2}$  [22].

Il s'ensuit que *A*, *B*, *C*, ... étant les nombres vrais des électrons des catégories 1, 2, 3, ...; *a*, *b*, *c*, ..., les nombres correspondants en électrons-grammes, il faut, dans les équations des paragraphes précédents, leur substituer des nombres efficaces *A'*, *B'*, *C'*, ... et *a'*, *b'*, *c'*, ...

Étant donné que, pour un atome, la somme des *F* relatifs à ses différents électrons est égale à *Z*, on voit que

$$\left. \begin{aligned} A' + B' + C' + \dots &= \Sigma(N_i Z_i) = A + B + C + \dots \\ \text{ou} \\ a' + b' + c' + \dots &= \Sigma(N_i Z_i) = a + b + c + \dots \end{aligned} \right\} \quad (35)$$

On pourrait donc se dispenser d'introduire les nombres efficaces quand toutes les catégories d'électrons participent au ralentissement (grandes énergies).

Mais aux énergies intermédiaires, certaines catégories étant exclues du ralentissement, on ne peut pas se passer d'introduire les nombres efficaces *a'*, *b'*, *c'*, ... dans les formules (32) et (33) qui donnent la variation des paramètres *a* et *ab*.

5.2. VARIATION DE LA CONTRIBUTION DES ÉLECTRONS *K* EN FONCTION DE L'ÉNERGIE. — Bethe [18] a traité ce problème, son calcul a été repris et amélioré par Brown [24] et Walske [23]. Brown a été obligé de conserver encore deux simplifications théoriques : emploi d'un modèle simplifié de l'atome, abandon des corrections relativistes.

On peut toujours écrire, d'après Bethe, [18]

$$\left(-\frac{dE^2}{dx}\right)_{\text{vraie}} = 4\pi e^4 z^2 \frac{M}{m} N B_K(E). \quad (36)$$

Brown [24] explicite comme suit la fonction *B<sub>K</sub>(E)* :

$$B_K(E) = p \log E + q - C_K \left(\frac{1}{E}\right). \quad (37)$$

Posons

$$-\frac{q}{p} = \log \frac{M}{4m} I_K = \log 459 I_K = \log E_P \quad (38)$$

et négligeons le terme *C<sub>K</sub>*, nous obtenons

$$\left(-\frac{dE^2}{dx}\right)_{\text{appr}} = 4\pi e^4 z^2 \frac{M}{m} N p \left(\log E - \log \frac{M}{4m} I_K\right), \quad (39)$$

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{appr}} = \frac{4\pi e^4 z^2}{mv^2} N p (\log 2mv^2 - \log I_K). \quad (40)$$

Nous retrouvons la formule (6), aux termes relativistes près.

Voici le sens des coefficients *p* et *q* de Brown : *p* est le nombre efficace pour les deux électrons de la couche *K* (pour chacun d'eux, la force d'oscillateur est donc *p* − 1); la formule (38), à partir de  $\frac{p}{q}$ , nous donne la valeur numérique du potentiel d'ionisation *I<sub>K</sub>* des électrons de la couche *K*, d'où le seuil *E<sub>P</sub>* de « commencement d'efficacité au ralentissement ». J'utiliserai plus loin, tirés du travail de Brown les deux renseignements suivants : nombres efficaces d'électrons, potentiels (ou seuils). Ils permettent de fixer l'origine et la pente de la demi-droite représentant dans la figure 1 la contribution des électrons *K* d'un élément donné.

La fonction  $C_K \left(\frac{1}{E}\right)$  est une correction correspondant à la différence entre la théorie approchée [form. (39) et (40)] et la réalité.

On a

$$\left(-\frac{dE^2}{dx}\right)_{\text{appr}} - \left(-\frac{dE^2}{dx}\right)_{\text{vraie}} = 4\pi e^4 z^2 \frac{M}{m} N C_K \left(\frac{1}{E}\right). \quad (41)$$

Bethe [18], puis Brown [24] ont étudié la fonction *B(E)* et la correction  $C \left(\frac{1}{E}\right)$  dans le cas de la couche *K*.

L'introduction de la correction  $C \left(\frac{1}{E}\right)$  signifie que la contribution au ralentissement des électrons *K* de l'argent n'est pas figurée, comme on l'a provisoirement admis jusqu'ici, par le segment OQ' suivi de la demi-droite Q'Q'' de la figure 1 : avant le seuil Q', il y a une contribution faible non nulle; après le seuil, la contribution croît lentement et tend asymptotiquement vers la demi-droite Q'Q''. La contribution vraie a l'allure de la courbe figurée au voisinage du point Q' dans la figure 1, il n'y a plus de discontinuité au voisinage du seuil. Cela se répercute, au voisinage du point Q, sur le graphique correspondant à l'émulsion dans son ensemble.



Mais le travail de Brown est basé sur un modèle simplifié de l'atome et ne tient pas compte de corrections relativistes. Je ne crois pas qu'il y ait grand intérêt à remplacer une demi-droite dont l'origine et la pente sont imprécises par une courbe. Je négligerai donc la correction  $C\left(\frac{1}{E}\right)$ .

#### 6. Données sur les niveaux électroniques des constituants usuels des émulsions.

Pour mener à bien le calcul numérique de la variation des paramètres  $\alpha$  et  $\alpha b$ , j'ai besoin :

a. Du nombre efficace des électrons de chaque couche; je le donne plus loin dans la table II, ainsi que les sommes correspondantes des forces d'oscillateurs par électron;

b. Des potentiels moyens d'ionisation  $I$  de chaque couche, ainsi que des seuils  $E_p = 459 I$  correspondants; je les donne dans la table III.

Voici comment ces données ont été obtenues : Siegbahn [25] donne les potentiels d'excitation expérimentaux  $J$  des raies  $X$  les plus dures des séries  $K$ ,  $L$ ,  $M$  des éléments.  $J$  est assimilable à l'énergie d'ionisation de ces couches, mais un peu inférieur à leur potentiel moyen d'ionisation  $I$ , puisque la particule peut expulser l'électron avec une vitesse non nulle. Je reproduis les  $J$  dans la première ligne de la table III.

Dans la deuxième ligne de la table III, je porte

$$J' = mc^2 \frac{(Z_{\text{eff}})^2}{n \times 136} \quad (42)$$

appelée par Bethe [18] et Brown [24] : « *potentiel idéal d'ionisation* ». Pour  $Z_{\text{eff}}$ , j'admetts, d'après Slater [26], pour la couche  $K$  :  $(Z - 0,3)$ ; pour la couche  $L$  :  $(Z - 4,15)$ ; pour la couche  $M$  :  $(Z - 14,75)$ .

Dans la troisième ligne de la table III, je porte pour les niveaux  $K$  le paramètre  $\theta$  de Bethe [18] et Brown [24]

$$\theta = \frac{J}{J'}. \quad (43)$$

Pour Ag et Br,  $\theta$  est voisin de 0,8, valeur qu'on peut conserver aussi pour I et S, constituants mineurs des émulsions. Pour  $\theta = 0,8$ , Brown [24] explicite ainsi la formule (38) :

$$B_K(E) = 1,64569 \log\left(\frac{mE}{MJ'}\right) + 2,40165 - C_K\left(\frac{1}{E}\right). \quad (44)$$

On a vu, au paragraphe 5.2, comment on en tire, pour la couche  $K$ , les forces d'oscillateurs, nombres efficaces d'électrons, ainsi que  $E_p$  et  $I$ .

En ce qui concerne les couches  $L$ ,  $M$ , la théorie est moins perfectionnée que dans le cas de la couche  $K$ ; les potentiels moyens d'ionisation sont certainement voisins de  $J'$ , et je les considérerai comme égaux à  $J'$ . Quant aux forces d'oscillateurs

(d'où les nombres efficaces), je les ai relevés dans un article de Bethe [23].

Aucun calcul théorique d'une correction  $C_L$  ou  $C_M$ , analogue à  $C_K$  n'a encore été fait. On continuera donc à admettre un commencement brusque de la participation au ralentissement, d'autant que les nombres efficaces et les potentiels d'ionisation ne sont pas connus avec précision.

L'imprécision qui subsiste dans le calcul que je fais ne me paraît pas grave : les variations de  $\alpha$  et de  $\alpha b$  sont des termes correctifs peu importants devant  $\alpha_\infty$  et  $\alpha b_\infty$ , et ce qui échappe est en somme le terme correctif d'un terme correctif, c'est-à-dire une correction du second ordre.

Quand l'énergie tombe au-dessous de 1 MeV, les corrections sur  $\alpha$  et  $\alpha b$  devenant plus importantes, il ne paraît pas prudent de conserver cette méthode de calcul, c'est pour quoi, au paragraphe 2.3 j'ai indiqué, pour calculer  $\frac{dE^2}{dx}$ , une méthode empirique qui donne entièrement satisfaction.

#### 7. Application pratique à l'émulsion photographique Ilford C<sub>2</sub>.

7.1. COMPOSITION CHIMIQUE ET DONNÉES NUMÉRIQUES. — Dans la table IV, les  $m_i$  (masse de  $i$  par centimètre cube) sont donnés d'après le fabricant [27]; les  $I_i$ , d'après Mano [17]; les  $I_i^*$ , d'après Bakker et Segré [28]; les valeurs de ces auteurs diffèrent de celles de Mano, surtout pour les éléments lourds. Les totaux

$$\Sigma n_i = 0,1342, \quad \Sigma (n_i Z_i) = 1,779, \quad \Sigma (n_i Z_i \log I_i) = 4,4070$$

sont effectués dans la table.

$Z$  moyen de l'émulsion (cf. notations et constantes physiques) est donc

$$Z = \frac{1,779}{0,1342} = 13,26. \quad (45)$$

La formule (10) nous donne une première valeur approchée (d'après Mano) du potentiel d'ionisation  $I$ , pour l'ensemble de l'émulsion

$$\log I \sim \frac{4,4070}{1,779} = 2,4772, \quad \text{d'où } I \sim 300 \text{ eV.} \quad (46)$$

7.2. VALEURS APPROCHÉES DE  $\alpha_\infty$ ,  $\alpha_\infty$ ,  $(\alpha b)_\infty$ . — L'application des formules (26) et (27) donne alors des valeurs approchées des paramètres

$$\alpha_\infty \sim 0,1180, \quad b_\infty \sim 0,8610, \quad (\alpha b)_\infty \sim 0,1016. \quad (47)$$

Le même calcul, d'après les potentiels de Bakker et Segré, donne

$$\alpha_\infty = 0,1180, \quad b_\infty = 0,907, \quad (\alpha b)_\infty = 0,1070. \quad (48)$$

7.3. VARIATION DES COEFFICIENTS  $\alpha$  ET  $(\alpha b)$  AUX ÉNERGIES MOYENNES. — Les seuils et les potentiels de la table III sont reproduits dans la table VI,



les logarithmes décimaux  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ , ... des potentiels sont donnés dans la table VI.

Les nombres efficaces  $a'$ ,  $b'$ ,  $c'$ , ont été calculés compte tenu de la composition chimique (table IV) et des nombres efficaces pour un atome (table II).

Dans les deux dernières colonnes de la table VI, je donne, calculés alors conformément aux formules (32) et (33), les corrections sur les paramètres  $a_\infty$  et  $(ab)_\infty$ .

7.4. AJUSTEMENT EMPIRIQUE DES COEFFICIENTS  $a$  ET  $(ab)$ . — Deux valeurs numériques,  $a_\infty$  et  $(ab)_\infty$  étant choisies, compte étant tenu de leurs variations calculées et portées dans la table VI, le calcul peut être mené à bien et confronté avec l'expérience. Cette confrontation a été faite avec l'ensemble des nombreux points expérimentaux  $E-R$  disponibles dans l'émulsion Ilford C<sub>2</sub> et non pas seulement avec trois d'entre eux, ce qui serait théoriquement suffisant, comme on l'a vu au paragraphe 2.3.

Comme  $a$  ne dépend pas des potentiels d'ionisation, il était logique que j'essaye  $a_\infty = 0,118$ , valeur calculée en fonction de la composition chimique. Il a été impossible d'ajuster une valeur  $b_\infty$  donnant un bon accord quel que soit l'énergie. J'ai pu en envisager deux explications :

1° Le coefficient  $a_\infty$  serait, en réalité, inférieur à 0,118. — Ce n'est pas à éliminer. Le fabricant [27] donne les  $m_i$  avec deux décimales seulement (cf. table IV), il ne précise pas s'il s'agit de l'émulsion sèche ou en équilibre avec l'humidité atmosphérique. Une erreur de 3 pour 100 sur la composition annoncée n'est donc pas exclue.

Un argument en faveur de cette explication est le suivant. Dans le calcul que j'ai précédemment publié, pour les grandes énergies [6], c'est-à-dire au-dessus de 13 MeV dans la zone où  $a$  et  $b$  gardent des valeurs constantes, l'ajustement avait été possible avec  $a_\infty = 0,118$ ,  $b_\infty = 0,74$ , valeur nettement inférieure à  $b_\infty = 0,861$ , prévue d'après Mano, et encore plus à  $b = 0,907$ , prévue d'après Bakker et Segré. Si  $a_\infty = 0,118$ , on est donc ainsi amené à considérer les potentiels expérimentaux comme très grossièrement erronés. Si, par contre, on admet une valeur plus petite de  $a_\infty$ , l'ajustement de  $b_\infty$ , dans cette zone d'énergie, conduit à une valeur supérieure à 0,74 et nous rapproche des résultats de ces auteurs.

2° Les variations  $a_\infty$  —  $a$  et  $(ab)_\infty$  —  $(ab)$  portées dans la table VI seraient trop faibles et devraient être sensiblement augmentées. Cela signifierait que les nombres efficaces d'électrons auraient été sous-estimés pour les couches K et L.

Un argument contre cette explication est le suivant : les théories donnant les forces d'oscillateurs ne sont certes qu'approchées, mais il semble peu vraisemblable qu'elles conduisent à une telle imprécision.

Je considère donc comme vraisemblable que le fabricant n'a pas donné la composition chimique avec toute la précision souhaitable, ce qui fausse le calcul de  $a_\infty$  et j'ajusterai aussi ce coefficient.

Cela ne veut pas dire que la deuxième explication ne joue pas pour une faible part. Il n'y a pas à s'en soucier pratiquement : si on est en possession d'une théorie qui approche de très près la réalité, fausser très légèrement les coefficients théoriques, dans une application numérique, permet de combler le faible écart entre la théorie et la réalité.

Les valeurs numériques suivantes :

$$a_\infty = 0,113, \quad (ab)_\infty = 0,094 \quad (49)$$

m'ont permis de calculer, depuis 1 MeV jusqu'à 220 MeV, une relation parcours-énergie (table VII pour  $E > 1$  MeV) en accord complet avec tous les points expérimentaux connus.

Des valeurs numériques légèrement différentes peuvent aussi assurer cet accord, cela tient à la marge d'imprécision existant sur les points expérimentaux. Je ne reproduis pas les essais d'ajustement des coefficients, j'en ai toutefois conclu avec certitude que

$$0,113 < a_\infty < 0,115 \quad \text{et} \quad 0,092 < (ab)_\infty < 0,096.$$

d'où l'on tire

$$b_\infty = 0,817 \pm 0,030. \quad (50)$$

7.5. CONSIDÉRATIONS SUR LES POTENTIELS D'IONISATION. — En nous reportant aux valeurs approchées de  $b_\infty$  calculées d'après Mano [cf. form. (47)] ou d'après Bakker et Segré [cf. form. (48)] et aux formules (25) et (10), on voit que les potentiels donnés par ces auteurs sont trop faibles et doivent, en moyenne, être multipliés par les coefficients suivants :

$$10^{(0,861-0,817 \pm 0,030)} = 1,11 \pm 0,07 \quad (\text{Mano}), \quad (51)$$

$$10^{(0,907-0,817 \pm 0,030)} = 1,23 \pm 0,07 \quad (\text{Bakker et Segré}). \quad (52)$$

S'il y a presque compatibilité avec les potentiels de Mano, j'arrive à la conclusion que les potentiels de Bakker et Segré sont certainement erronés bien que, pourtant, ces auteurs (28) aient fait leurs expériences avec des particules de grande énergie.

Mon calcul porte sur l'émulsion globale et non sur les éléments. On voit dans la table IV que Ag et Br contribuent ensemble pour 80 pour 100 au facteur  $\sum_i (n_i Z_i \log I_i)$  de l'émulsion. Rien de sûr ne peut être conclu pour les éléments légers et c'est certainement dans les potentiels des éléments lourds, Ag et Br, que siège la discordance que je viens de signaler.

D'après les formules (50) et (25), j'obtiens comme potentiel moyen d'ionisation de l'ensemble de l'émulsion la valeur suivante :

$$I = 332 \pm 25 \text{ eV} \quad (\text{Ilford C}_2). \quad (53)$$

A condition d'admettre que les nombres efficaces



d'électrons indiqués dans la table II sont surestimés ou sous-estimés, les corrections à apporter aux énergies moyennes sur les paramètres  $\alpha$  et  $(ab)$  changeraient; finalement, les marges d'erreur dans la détermination de  $\alpha$  et  $(ab)$  seraient un peu plus fortes que je ne l'ai indiqué à la fin du paragraphe 7.4.

On pourrait penser qu'alors la compatibilité avec les potentiels de Bakker et Segré deviendrait possible. Je vais montrer qu'il n'en est rien.

Dans la région autour de 5 MeV, il y a suffisamment de points expérimentaux pour qu'on puisse tracer avec assez de certitude une courbe empirique et relever sur elle

$$0,173 < \left( -\frac{dE^2}{dx} \right)_{5 \text{ MeV}} < 0,180. \quad (54)$$

Remplaçons, dans l'équation (30),  $\varepsilon$  et  $\psi$  par leurs valeurs numériques pour  $E = 5 \text{ MeV}$ , prises dans la table I, il vient

$$0,173 < \left[ -\frac{dE^2}{dx} \right]_{5 \text{ MeV}} = 0,7011 \alpha_{5 \text{ MeV}} + 1,008(ab)_{5 \text{ MeV}} < 0,180. \quad (55)$$

Admettons qu'il faille tripler les corrections sur  $\alpha$  et  $ab$  relevées dans la table III, nous aurions

$$\alpha_{\infty} - \alpha_{5 \text{ MeV}} = 3 \times 0,00374 = 0,01122, \quad (56)$$

$$(ab)_{\infty} - (ab)_{5 \text{ MeV}} = 3 \times (-0,00365) = -0,01095. \quad (57)$$

Combinant (55), (56) et (57), il vient

$$0,173 - 0,0038 < 0,7011 \alpha_{\infty} + 1,008(ab)_{\infty} < 0,180 - 0,0038. \quad (58)$$

Il est exclu que l'efficacité des électrons  $K$  sorte des limites suivantes : zéro à trois fois ce que, d'après les calculs de Bethe (23) et Brown (24), j'ai porté dans la table II. Comparant alors (55) et (58), ces inégalités entraînent

$$0,169 < 0,7011 \alpha_{\infty} + 1,008(ab)_{\infty} < 0,180. \quad (59)$$

Si, conformément aux potentiels de Segré, on porte [cf. form. (48)]  $b = 0,907$ , l'inégalité (59) devient

$$0,1045 < \alpha_{\infty} < 0,1115. \quad (60)$$

On a vu plus haut que, d'après la composition annoncée par le fabricant,  $\alpha_{\infty} = 0,118$  et que l'erreur relative ne peut dépasser 3 pour 100. A moins que le fabricant n'ait sciemment induit les physiciens en erreur en publiant une composition fausse, les potentiels de Bakker et Segré [28] doivent être considérés comme erronés.

La comparaison avec la courbe empirique au voisinage de 3 MeV et au voisinage de 10 MeV amène à des inégalités tout aussi impossibles à satisfaire que l'inégalité (60).

7.6. PROCÉDÉS DE CALCUL, RÉSULTATS NUMÉRIQUES, COURBES PARCOURS-ÉNERGIE. — J'ai indi-

qué au paragraphe 2.3 comment obtenir  $\frac{dE^2}{dx}$  pour  $E < 0,45 \text{ MeV}$  et pour  $0,45 \text{ MeV} < E < 1 \text{ MeV}$ . Pour  $1 \text{ MeV} < E < 220 \text{ MeV}$ , j'ai porté

$$\alpha_{\infty} = 0,115, \quad ab_{\infty} = 0,094$$

dans la formule (30) en tenant compte, au-dessous du plus élevé des seuils ( $E_K = 16,3 \text{ MeV}$ ), des corrections sur  $\alpha$  et  $ab$  calculées dans la table VI.

Je donne, dans la table VII, la fonction inverse

$$R' = \frac{dR}{dE^2} = \frac{1}{g(E^2)},$$

qu'il s'agit d'intégrer. La constante d'intégration  $R(E_0^2)$  de la formule (31) a été choisie de façon à donner le meilleur accord du calcul et de l'ensemble des points expérimentaux  $E-R$ .

L'intégration a été faite, à l'aide d'une machine à calculer, par des méthodes numériques approchées; les valeurs discontinues de  $E^2$  sont choisies assez rapprochées : 1° pour que le calcul ne soit pas en

lui-même une source d'imprécision supérieure à  $\frac{R}{4000}$

2° pour que l'emploi entre les valeurs figurant dans la table VII d'une série de Taylor limitée à ses trois premiers termes n'introduise jamais une

erreur supérieure à  $\frac{R}{2000}$ .

Je donne dans la table VII les coefficients  $R'$  et  $\frac{R''}{2}$  de ce développement. Pour toute énergie  $E$ , on aura le parcours

$$R(E^2) = R(E_0^2) + R'(E^2 - E_0^2) + \frac{R''}{2}(E^2 - E_0^2)^2. \quad (61)$$

Dans la table VII, à titre indicatif, j'ai porté aussi les valeurs de  $E$  (bien noter cependant que les dérivées  $R'$  et  $R''$  sont prises par rapport à  $E^2$ , variable d'intégration).

Sur la figure 2, j'ai représenté, en coordonnées bilogarithmiques les courbes parcours énergie que j'ai calculées pour les protons ( $P_1, P_2, P_3$ ), les deutons ( $D_1, D_2, D_3$ ), les tritons ( $T_1, T_2, T_3$ ), les particules  $\alpha$  ( $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$ ).

La petite échelle du graphique limite pratiquement la précision des lectures sur les courbes à 2 pour 100 environ. Pour obtenir une précision meilleure, il convient :

1° Pour les protons, de se reporter à la table VII et à la formule d'interpolation (61).

2° Pour les deutons, tritons, particules  $\alpha$ , de transformer les résultats relatifs aux protons [table VII et formule (61)] en leur appliquant respectivement les formules (2), (2 bis), (2 ter).

Il faut aussi rappeler que, pour  $E_x < 3 \text{ MeV}$ , la courbe déduite par application de la formule (2 ter) et que j'ai figurée par quelques points très espacés est incorrecte. Dans cette région d'énergie, la courbe  $\alpha_1$



correcte que j'ai figurée est basée sur des déterminations expérimentales directes de parcours.

7.7. ACCORD DE LA RELATION CALCULÉE ET DES DÉTERMINATIONS EXPÉRIMENTALES. — Souvent, les

expérimentateurs donnent ainsi leurs points parcours-énergie :  $R \pm \Delta_1 R$ ,  $E \pm \Delta E$ . Je transforme l'imprécision-énergie en imprécision-parcours équivalente  $\Delta_2 R = {}_2 R' E \Delta E$ ,  $R'$ , dérivée par rapport à  $E^2$ , étant pris dans la table VII.

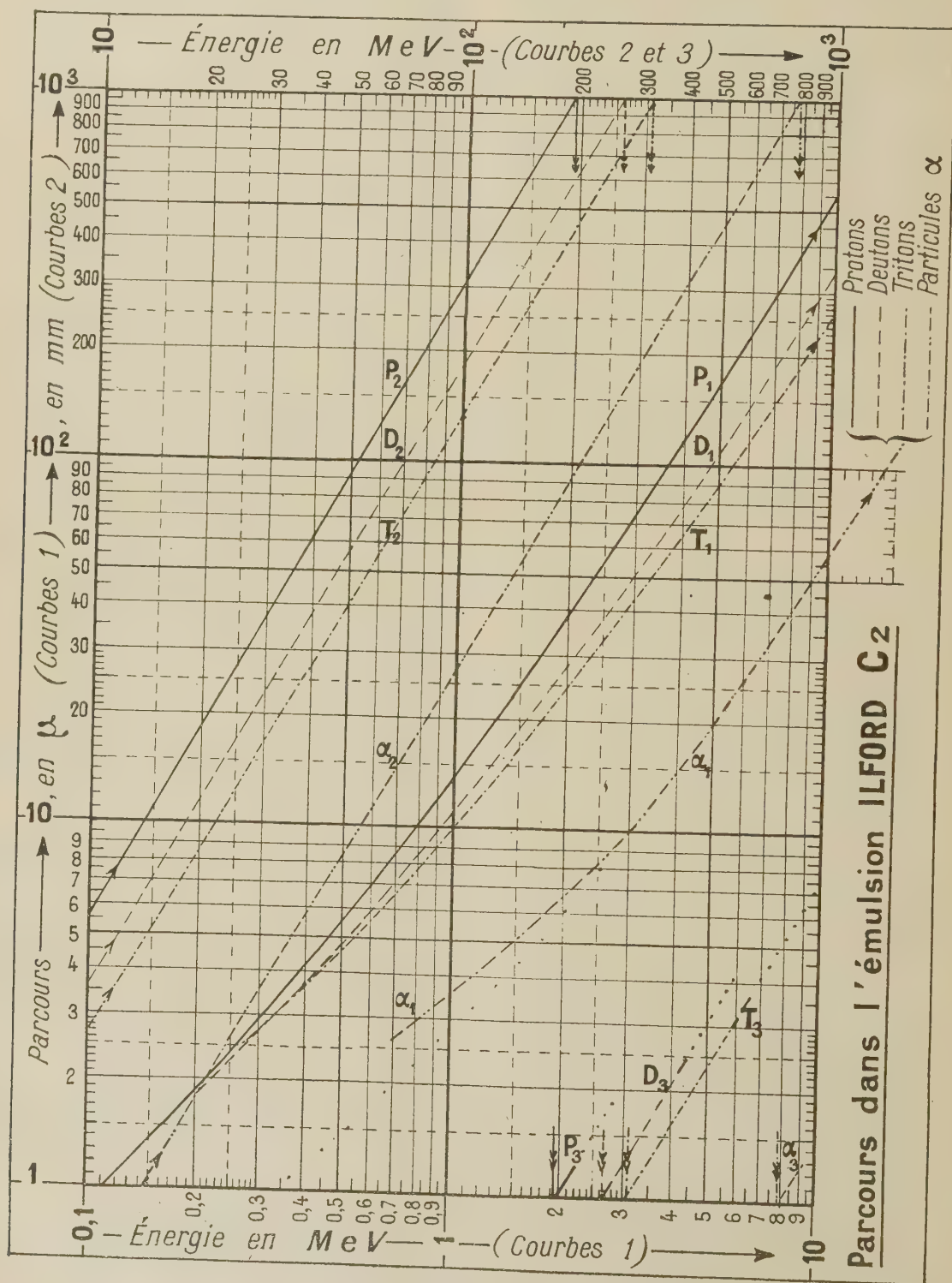


Fig. 2.



En général, deux autres causes d'imprécision passent inaperçues ou ne sont pas signalées :

1° La diffraction limite le pouvoir séparateur des microscopes. J'ai précédemment montré [2] que, sur le même lot de traces, mesurés par deux expérimentateurs différents, il peut exister des différences systématiques voisines de  $\Delta_3 R = 0,15 \mu$ . Cette erreur, pour des parcours inférieurs à  $200 \mu$ , n'est souvent pas négligeable devant les autres.

2° J'ai aussi précédemment signalé [2] qu'il existe des différences sensibles entre différents micromètres-objectifs utilisés comme étalons de longueur et même entre les deux moitiés d'un même micromètre. Je ne pense pas [2] surestimer cette imprécision en la considérant comme égale à  $\Delta_4 R = \frac{R}{300}$ .

Le résultat de mon calcul doit être comparé à l'expérience, compte tenu de l'imprécision totale de celle-ci, soit

$$\Delta R = \Delta_1 R + \Delta_2 R + \Delta_3 R + \Delta_4 R. \quad (62)$$

La table VIII résume cette comparaison.

L'accord est parfait avec les résultats de Nereson et Reines [19], Faraggi [29], Rotblat [9], [10], Catala et Gibson [11], Panofsky et Fillmore [30], Cüer et Jung [31]. L'accord est parfait aussi avec les résultats de Lattès, Fowler et Cüer pour  $E < 5 \text{ MeV}$ , et il faut signaler qu'au-dessus de  $5 \text{ MeV}$  ces auteurs sont en désaccord avec toutes les mesures ultérieures. Bradner, Smith, Barkas et Bishop [13] signalent eux-mêmes comme erroné leur point à  $16,4 \text{ MeV}$  et pensent que cela peut être dû à une erreur dans le repérage de la position de leur plaque. Bien qu'ils ne le signalent pas, leur point à  $7,8 \text{ MeV}$  est erroné (parcours excessif par rapport aux autres expérimentateurs). L'erreur sur ces deux points diminue un peu le crédit qu'on attribue à la précision annoncée par Bradner et al. pour leurs autres mesures. Malheureusement, personne d'autre n'a encore déterminé de parcours pour  $E > 16 \text{ MeV}$ . L'accord de mon calcul avec les points qu'ils donnent jusqu'à  $40 \text{ MeV}$  est bon.

Puisque, depuis  $E = 0,1 \text{ MeV}$  jusqu'à  $E = 40 \text{ MeV}$  la table VII calculée donne des parcours indiscernables des parcours expérimentaux, je me suis cru autorisé à extrapoler le calcul jusqu'à  $E = 220 \text{ MeV}$ . On peut escompter que la divergence calcul-expérience ne dépasse pas 2 pour 100 pour les énergies les plus élevées.

7.8. COMPARAISON AVEC LES TABLES PRÉCÉDEMMENT CALCULÉES. — Par un procédé moins rigoureux, j'avais précédemment calculé, avec M. Bogaardt [4], une table des parcours jusqu'à  $E = 8 \text{ MeV}$ . Cette table est pratiquement identique à la partie correspondante de la table VII.

Sans tenir compte des variations de  $\alpha$  et  $ab$ , j'avais, par la suite, calculé une table valable aux énergies élevées [6]. Il ne faut donc pas s'étonner que, dans la zone des énergies moyennes  $5 \text{ MeV} < E < 13 \text{ MeV}$ , des expériences ultérieures [10], [11] aient montré une légère erreur de ce calcul. Toutefois, pour  $E > 10 \text{ MeV}$ , les parcours ne différeraient pas de plus de 1 pour 100 de ceux de la table VII.

La méthode actuellement suivie résout pour la première fois le calcul de la relation parcours-énergie d'un mélange, quelle que soit l'énergie. Elle doit être préférée aux méthodes antérieurement développées.

Pour toute autre composition d'émulsion, les tables de fonctions auxiliaires, d'efficacité des couches, de seuils et de potentiels d'ionisation que je donne plus loin ne seraient pas à recalculer. Le calcul d'une table analogue à la table VII serait considérablement allégé. Rappelons (cf. § 2.3) que trois points expérimentaux  $E - R$  suffiraient à fixer toutes les constantes intervenant dans le calcul.

### 8. Suggestion pour une meilleure cohérence des résultats expérimentaux.

Les principales causes de divergence entre les résultats des différents expérimentateurs sont dues :

1° à l'imprécision  $\Delta_4 R$  provenant de la non identité des micromètres objectifs utilisés par eux [2];

2° à de petites différences dans le pouvoir de ralentissement des émulsions utilisées, dues à d'éventuelles variations faibles de la composition chimique entre les lots différents d'émulsions fournies par le fabricant, et surtout à la plus ou moins grande humidité des plaques en équilibre avec un air ambiant de degré hygrométrique mal connu.

On pourrait renoncer au micron comme unité de longueur et le remplacer par la longueur moyenne des  $\alpha$  de Th C' voisine de  $47 \mu$  et qu'on conviendrait égale à  $47 \mu$  pour la commodité.

Chaque physicien déterminerait dans l'émulsion qu'il emploie en vue d'une expérience, dans le même lot de fabrication d'émulsion, dans les mêmes conditions d'humidité, le parcours moyen des  $\alpha$  de Th C', par référence auquel seraient mesurés les autres parcours.

Je pense qu'on arriverait ainsi à faire concorder à  $1/400^{\circ}$  près les parcours mesurés par deux auteurs différents pour une même énergie, tandis qu'actuellement cette concordance n'est réalisée qu'à  $1/100^{\circ}$  ou  $1/200^{\circ}$  près.

La relation parcours-énergie dans les émulsions serait ainsi mieux déterminée, la précision de l'émulsion comme matériel d'expérience serait améliorée.



## 9. Tables numériques.

TABLE I.

Fonctions auxiliaires  $\beta^2$ ,  $\varepsilon$ ,  $\varepsilon'$ ,  $\psi(E^2)$  en fonction de  $E^2$ ,  
pour les protons.

$E^2$ (MeV) <sup>2</sup>	$10^4 \beta^2$	$10^4 \varepsilon$	$10^4 \varepsilon'$	$\psi(E^2)$
1.....	—	1 600	685	—0,00069
1,2.....	—	1 752	750	+0,03891
1,4.....	—	1 893	810	+0,07239
1,6.....	—	2 024	866	0,10140
1,8.....	—	2 147	919	0,12697
2.....	—	2 263	969	0,14988
2,5.....	—	2 530	1 083	0,19839
3.....	—	2 771	1 186	0,23803
3,5.....	—	2 993	1 282	0,27156
4.....	—	3 200	1 370	0,30062
5.....	—	3 578	1 532	0,34920
6.....	—	3 919	1 678	0,38891
7.....	—	4 233	1 812	0,42252
8.....	—	4 525	1 937	0,45164
9.....	—	4 800	2 055	0,47735
10.....	—	5 060	2 166	0,50035
12.....	—	5 307	2 272	0,54017
14.....	—	5 987	2 563	0,57392
16.....	—	6 400	2 740	0,60316
18.....	—	6 788	2 906	0,62897
20.....	—	7 155	3 063	0,65208
25.....	10 576	8 002	3 437	0,70110
30.....	11 574	8 764	3 760	0,74124
35.....	12 495	9 468	4 059	0,77525
40.....	13 339	10 116	4 330	0,80476
45.....	14 150	10 837	4 595	0,83092
50.....	14 906	11 320	4 840	0,85421
60.....	16 331	12 401	5 294	0,89474
70.....	17 602	13 397	5 712	0,92912
80.....	18 799	14 324	6 099	0,95899
90.....	19 922	15 194	6 462	0,98541
100.....	20 983	16 018	6 804	1,00911
120.....	22 949	17 548	7 439	1,05027
140.....	24 755	18 957	8 020	1,08523
160.....	26 431	20 269	8 561	1,11566
180.....	27 999	21 501	9 065	1,14262
200.....	29 479	22 666	9 541	1,16684
250.....	32 873	25 350	10 633	1,21846
300.....	35 927	27 778	11 612	1,26098
350.....	38 720	30 010	12 507	1,29733
400.....	41 310	32 088	13 336	1,32901
450.....	43 733	34 043	14 111	1,35717
500.....	46 018	35 893	14 840	1,38255
600.....	50 243	39 331	16 187	1,42689

$E^2$ (MeV) <sup>2</sup>	$10^4 \beta^2$	$10^4 \varepsilon$	$10^4 \varepsilon'$	$\psi(E^2)$
700.....	54 104	42 497	17 416	1,46484
800.....	57 676	45 441	18 551	1,49811
900.....	61 012	48 216	19 609	1,52779
1 000.....	64 153	50 840	20 603	1,55461
1 100.....	67 124	53 334	21 542	1,57911
1 200.....	69 950	55 720	22 436	1,60172
1 300.....	72 650	58 009	23 286	1,62265
1 400.....	75 235	60 212	24 100	1,64225
1 500.....	77 720	62 339	24 881	1,66061
1 600.....	80 112	64 396	25 632	1,67795
1 800.....	84 658	68 330	27 055	1,70995
2 000.....	88 928	72 050	28 389	1,73900
2 500.....	98 636	80 620	31 410	1,80200
3 000.....	107 279	88 390	34 091	1,85513
3 500.....	115 119	95 530	36 504	1,90133
4 000.....	122 318	102 250	38 739	1,94248
4 500.....	129 026	108 330	40 709	1,97937
5 000.....	135 264	114 400	42 669	2,01352
6 000.....	146 717	125 470	46 145	2,07416
7 000.....	157 050	135 660	49 256	2,12742
8 000.....	166 502	145 160	52 082	2,17519
9 000.....	175 240	154 060	54 662	2,21863
10 000.....	183 366	162 570	57 081	2,25878
12 000.....	198 175	178 360	61 424	2,33100
15 000.....	217 607	199 800	67 039	2,42481
20 000.....	244 827	231 390	74 769	2,55606
25 000.....	267 649	259 350	81 104	2,66714
30 000.....	287 404	284 720	86 470	2,76483
40 000.....	320 561	330 030	95 230	2,93378
50 000.....	347 891	370 200	102 191	3,07924

TABLE II.

Somme  $F$  des forces d'oscillateurs et nombre d'élec-  
trons efficaces pour différentes couches des atomes de  
l'émulsion.

Couche électronique.	F.	Électrons efficaces.
$K$ (2 électrons) { I, Ag, Br, S...	0,645	1,645
	I.....	0,42
$L_1$ (2 électrons) { Ag, Br.....	0,46	1,46
	S.....	0,56
$L_2$ (6 électrons) { I, Ag.....	0,30	3,90
	Br.....	0,42
	S.....	1,12
$L_{\text{tot}} = L_1 + L_2$ { I.....	—	5,32
(8 électrons) { Ag.....	—	5,36
	Br.....	—
	S.....	—

TABLE III.

Classement des niveaux et « seuils »  $E_P$  du ralentissement, pour les protons.

Couche.	$I_K$	$Ag_K$	$Br_K$	$I_L$	$Ag_L$	$S_K$	$Br_L$	$I_M$	$Ag_M$	$O_K$	$Br_M$	$S_L$
$J_{\text{exp}}$ (KeV).....	33,2	25,5	13,5	5,18	3,79	2,46	1,77	1,08	0,71	0,53	—	—
$J'_{\text{idéal}}$ (KeV).....	38,0	29,8	16,4	8,1	6,2	3,35	3,2	2,21	1,58	0,81	0,62	0,55
$\theta = \left(\frac{J}{J'}\right)_K$ .....	0,87	0,83	0,82	—	—	0,75	—	—	—	0,65	—	—
$E_P$ (MeV).....	16,3	12,7	7,0	3,7	2,85	1,45	1,45	1,02	0,73	0,37	0,28	0,25
$I$ (KeV).....	35,2	27,5	15,2	8,1	6,2	3,15	3,2	2,21	1,58	0,81	0,62	0,55



TABLE IV.  
Données concernant l'émulsion Ilford C<sub>2</sub>.

Élément.	$Z_i$	$a_i$	$m_i$	$n_i$	$n_i Z_i$	$I_i$	$\log I_i$	$n_i a_i \log I_i$	$I_i^{\frac{1}{2}}$
H.....	1	1,008	0,056	0,0555	0,0555	16	1,2041	0,0668	(15,6)
C.....	6	12,010	0,27	0,0225	0,135	75	1,8751	0,2531	(76,4)
N.....	7	14,008	0,067	0,0048	0,0335	81	1,9085	0,0639	(86)
O.....	8	16,000	0,27	0,0168	0,135	99	1,9956	0,2694	(96)
S.....	16	32,066	0,010	0,0003	0,005	180	2,2553	0,0113	(170)
Br.....	35	79,916	1,34	0,0168	0,587	380	2,5798	1,5143	(333)
Ag.....	47	107,88	1,85	0,0171	0,806	490	2,6902	2,1683	(428)
I.....	53	126,92	0,052	0,0004	0,022	530	2,7243	0,0599	(502)
Totaux pour l'émulsion.....				0,1342	1,779			4,4070	

TABLE V.

1° Fonctions empiriques de ralentissement,  $p_i(E)$ , pour divers éléments (l'unité est  $10^{-15}$  eV, pour 1 atome/cm<sup>3</sup> de matière ralentissante, et 1 cm de parcours), pour  $E < 0,5$  MeV.

2° Fonction  $-\frac{dE^2}{dx}$ , déduite des précédentes, pour l'émulsion Ilford C<sub>2</sub> (énergies en mégaelectrons-volts, parcours en microns).

$E$ (MeV).	$p_i(E)$ , d'après Warshaw.						$-\frac{dE^2}{dx}$ Ilford C <sub>2</sub> .	$E$ (MeV).	$p_i(E)$ , d'après Warshaw.						$-\frac{dE^2}{dx}$ Ilford C <sub>2</sub> .
	Ag.	Br.	O.	N.	C.	H.			Ag.	Br.	O.	N.	C.	H.	
0,050...	20,0	19,6	14,0	12,9	11,7	—	—	0,300...	23,0	21,5	9,5	8,6	7,7	4,5	$4,98 \cdot 10^{-2}$
0,100...	25,0	24,3	14,6	13,5	12,4	9,4	$2,36 \cdot 10^{-2}$	0,350...	22,0	20,4	8,9	8,0	7,3	3,7	$5,39 \cdot 10^{-2}$
0,150...	25,6	24,8	12,7	11,9	10,6	7,8	$3,27 \cdot 10^{-2}$	0,400...	21,0	19,6	8,4	7,6	6,9	3,1	$5,76 \cdot 10^{-2}$
0,200...	25,6	24,2	11,3	10,5	9,4	6,6	$4,04 \cdot 10^{-2}$	0,450...	20,1	18,8	8,0	7,2	6,6	2,6	$6,12 \cdot 10^{-2}$
0,250...	24,2	22,8	10,2	9,4	8,5	5,5	$4,55 \cdot 10^{-2}$								

TABLE VI.

Variation calculée, suivant l'énergie, des paramètres  $\alpha$  et  $(ab)$  (Ilford C<sub>2</sub>, protons).

N°.	Couche éliminée.	$E_p$ (MeV).	$I_1, I_2, \dots$ (eV).	$\alpha, \beta, \gamma, \dots$	$\alpha', \beta', \dots$	$10^5(\alpha_\infty - \alpha)$	$[10^5(ab) - (ab)_\infty]$
	néant					0	0
1.....	$I_K$	16,3	35 200	4,5465	0,00066	4	5
2.....	$Ag_K$	12,7	27 500	4,4393	0,02813	191	210
3.....	$Br_K$	7,0	15 200	4,1818	0,02764	374	365
4.....	$I_L$	3,7	8 100	3,9085	0,00213	388	371
5.....	$Ag_K$	2,85	6 200	3,7924	0,09166	996	649
6.....	$S_K + Br_L$	1,45	3 150	3,4983	0,09659	1 634	752
7.....	$I_M$	1,02	2 210	3,3384	—	—	—
8.....	$Ag_M$	0,73	1 580	3,2014	—	—	—
9.....	$O_K$	0,37	810	2,9069	—	—	—

TABLE VII.

Parcours des protons dans l'émulsion Ilford C<sub>2</sub> calculé en fonction du carré de l'énergie.

$E^2$ (MeV) <sup>2</sup> .	$R$ ( $\mu$ ).	$R' = \frac{dx}{dE^2}$ .	$-\frac{R''}{2}$ .	$E$ (MeV).	$E^2$ (MeV) <sup>2</sup> .	$R$ ( $\mu$ ).	$R' = \frac{dx}{dE^2}$ .	$-\frac{R''}{2}$ .	$E$ (MeV).
0,01.....	0,92	42,55	820	0,1	0,04.....	1,842	5,00	120	0,2
0,015.....	1,12	37,04	460	0,1225	0,06.....	2,322	2,32	69	0,2450
0,02.....	1,29	31,65	313	0,1414	0,08.....	2,75	20,49	56	0,2828
0,03.....	1,58	27,47	177	0,1732	0,1.....	3,14	19,05	34,3	0,3162



TABLE VII (suite).

$E^2$ (MeV) <sup>2</sup> .	$R$ ( $\mu$ ).	$R' = \frac{dx}{dR^2}$	$-\frac{R''}{2}$	$E$ (MeV).	$E^2$ (MeV).	$R$ ( $\mu$ ).	$R' = \frac{dx}{dE^2}$	$-\frac{R''}{2}$	$E$ (MeV).
0,15.....	4,04	17,09	17,6	0,3873	120.....	644,2	4,61765	2,32	10,954
0,2.....	4,85	15,50	12,1	0,4472	140.....	735,7	4,53204	1,94	11,832
0,25.....	5,60	14,49	8,65	0,5	160.....	825,6	4,45994	1,66	12,649
0,3.....	6,30	13,66	6,60	0,5477	180.....	914,1	4,39699	1,44	13,416
0,4.....	7,61	12,50	4,35	0,6324	200.....	1 001,5	4,34176	1,28.10 <sup>-3</sup>	14,142
0,5.....	8,82	11,76	3,12	0,7071	250.....	1 215,6	4,22818	9,9.10 <sup>-4</sup>	15,811
0,6.....	9,96	11,17	2,36	0,7746	300.....	1 424,7	4,13866	7,95	17,321
0,7.....	11,06	10,75	1,90	0,8366	350.....	1 629,7	4,06480	6,70	18,708
0,8.....	12,12	10,42	1,57	0,8944	400.....	1 831,4	4,00236	5,70	20
0,9.....	13,14	10,15	1,30	0,9487	450.....	2 030	3,94827	4,95	21,21
					500.....	2 226	3,90065	4,42	22,36
1.....	14,14	9,84116	1,09	1	600.....	2 612	3,81987	3,65	24,49
1,2.....	16,07	9,47535	0,83	1,095	700.....	2 991	3,75302	3,05	26,46
1,4.....	17,94	9,18662	0,67	1,183	800.....	3 363	3,69611	2,62	28,28
1,6.....	19,75	8,95023	0,555	1,265	900.....	3 730	3,64660	2,32	30
1,8.....	21,52	8,75159	0,472	1,342	1 000.....	4 093	3,60283	2,06	31,62
2.....	23,25	8,56626	0,410	1,414	1 100.....	4 451	3,56365	1,84	33,17
2,5.....	27,45	8,22483	0,300	1,584	1 200.....	4 806	3,52813	1,67	34,64
3.....	31,49	7,95102	0,238	1,732	1 300.....	5 156	3,49578	1,54	36,06
3,5.....	35,40	7,73299	0,194	1,871	1 400.....	5 505	3,46597	1,42	37,43
4.....	39,23	7,55350	0,164	2	1 500.....	5 850	3,43843	1,32	38,73
5.....	46,53	7,27114	0,123	2,36	1 600.....	6 192	3,41277	1,23	40
6.....	53,79	7,05542	9,7.10 <sup>-2</sup>	2,450					
7.....	60,76	6,88250	7,9	2,646	1 800.....	6 870	3,36624	1,09.10 <sup>-4</sup>	42,43
8.....	67,56	6,73923	6,65	2,828	2 000.....	7 539	3,32493	9,7.10 <sup>-5</sup>	44,72
9.....	74,24	6,61279	5,8	3	2 500.....	9 179	3,23824	7,7	50
10.....	80,79	6,50182	5,05	3,162	3 000.....	10 780	3,16807	6,4	54,77
12.....	93,61	6,31904	4,05	3,464	3 500.....	12 356	3,10913	5,35	59,16
14.....	106,09	6,16945	3,28	3,742	4 000.....	13 891	3,05813	4,80	63,24
16.....	118,30	6,04661	2,84	4	4 500.....	15 408	3,01376	4,25	67,08
18.....	130,29	5,94205	2,44	4,243	5 000.....	16 905	2,97345	3,80	70,71
20.....	142,08	5,85138	2,15	4,472	6 000.....	19 843	2,90425	3,15	77,46
25.....	170,86	5,66780	1,62	5	7 000.....	22 720	2,84571	2,72	83,67
30.....	198,83	5,52559	1,29	5,477	8 000.....	25 540	2,79491	2,38	89,44
35.....	226,2	5,41040	1,08.10 <sup>-2</sup>	5,916	9 000.....	28 310	2,75009	2,12	94,86
40.....	253,0	5,31417	9,05.10 <sup>-3</sup>	6,325	10 000.....	31 040	2,70971	1,92	100
45.....	279,3	5,23132	7,75	6,708	12 000.....	36 390	2,63969	1,60	109,54
50.....	305,3	5,16019	6,85	7,071	15 000.....	44 170	2,55340	1,29.10 <sup>-5</sup>	122,47
60.....	356,3	5,03834	5,47.10 <sup>-3</sup>	7,746	20 000.....	56 650	2,44082	9,90.10 <sup>-6</sup>	141,42
70.....	406,1	4,93922	4,55	8,367	25 000.....	68 620	2,35239	7,95	158,11
80.....	455,1	4,85604	3,85	8,944	30 000.....	80 200	2,27936	6,70	173,20
90.....	503,3	4,78468	3,35	9,487	40 000.....	102 380	2,16259	5,05	200
100.....	550,8	4,72232	2,92	10	50 000.....	123 530	2,07077	4,15	223,60

N. B. — Jusqu'à 0,1 (MeV)<sup>2</sup> la table est déduite des mesures empiriques de Warchaw. Entre 0,1 (MeV)<sup>2</sup> et 1 (MeV)<sup>2</sup> la fonction  $dE^2/dx$  a été interpolée. Au dessus de 1 (MeV)<sup>2</sup> jusqu'à 50.000 (MeV)<sup>2</sup>, la fonction  $dE^2/dx$  a été calculée, au dessus de 1 600 (MeV)<sup>2</sup> il n'y a plus de points expérimentaux  $E - R$ .

TABLE VIII.

Comparaison des parcours expérimentaux et calculés (protons dans l'émulsion Ilford C<sub>2</sub>).

Auteur.	$E$ (MeV).	$R_{exp}$ ( $\mu$ ).	$\Delta R = \Sigma \Delta_i$	$R_{calc}$ ( $\mu$ ).	Imprécisions expérimentales.			
					$\Delta_1 R$	$\Delta_2 R$	$\Delta_3 R$	$\Delta_4 R$
N. et R.....	0,2	1,7	0,3	1,84	0,15	—	0,15	—
N. et R.....	0,3	2,85	0,3	2,95	0,15	—	0,15	0,01
N. et R.....	0,5	5,5	0,35	5,60	0,20	—	0,15	0,02
Cüer, J.....	0,5	5,4	0,25	5,60	0,1	—	0,15	0,02



TABLE VIII (suite).

Auteurs. (MeV).	E (MeV).	R <sub>exp</sub> (μ).	$\Delta R = \Sigma \Delta_i$	R <sub>calc</sub> (μ).	Imprécisions expérimentales.			
					$\Delta_1 R$	$\Delta_2 R$	$\Delta_3 R$	$\Delta_4 R$
Faraggi.....	0,58	6,1	0,6	6,80	0,15	0,31	0,15	0,02
Faraggi.....	0,91	12,1	0,6	12,40	0,06	0,38	0,15	0,04
Rotblat.....	1	14,1	0,3	14,14	0,07	—	0,15	0,05
Cüer, J.....	1	14,2	0,3	14,14	0,1	—	0,15	0,05
L. F. C.....	1,20	19,3	0,7	18,31	0,04	0,44	0,15	0,06
Rotblat.....	2	39,7	0,5	39,23	0,20	—	0,15	0,13
Cüer, J.....	2	39,1	0,5	39,23	0,20	—	0,15	0,13
Cüer, J.....	3	73,6	0,8	74,24	0,37	—	0,15	0,25
L. F. C.....	3,2	82,7	1,4	82,35	0,20	0,78	0,15	0,27
Cüer, J.....	4	118,0	1,15	118,3	0,6	—	0,15	0,39
Rotblat.....	4	119,3	1,1	118,3	0,55	—	0,15	0,39
L. F. C.....	4,99	171,0	3,2	170,3	2,5	—	0,15	0,57
Cüer, J.....	5	171,9	1,6	170,9	0,85	—	0,15	0,57
Cat. Gib.....	6	232,5	1,9	231,6	1,15	—	—	0,77
Rotblat.....	7	299,9	2,5	300,1	1,5	—	—	1,0
*B. S. B. B.....	7,8	389	4,1	360,5	2,7	1,2	—	1,2
Rotblat.....	9	457,8	3,1	460,0	2,6	—	—	1,5
*L. F. C.....	9,09	482,0	2,6	467,8	1,0	—	—	1,6
Rotblat.....	10	547,5	4,0	550,8	2,2	—	—	1,8
Cat. Gib.....	10	546	4,0	550,8	2,2	—	—	1,8
Pan. Fil.....	11,25	673	3,8	674,6	1,6	—	—	2,2
Rotblat.....	14	981,2	8,3	993,9	5,0	—	—	3,3
Cat. Gib.....	14	993	13	993,9	9,9	—	—	3,3
Cat. Gib.....	16	1 254	16	1 241	12,4	—	—	4,1
*B. S. B. B.....	16,4	1 358	17	1 296	8,1	4,4	—	4,3
B. S. B. B.....	17,6	1 466	15	1 465	4,5	5,2	—	4,9
B. S. B. B.....	22,3	2 244	24	2 216	8,9	8,0	—	7,2
B. S. B. B.....	25,6	2 849	27	2 813	7,1	10,0	—	9,5
B. S. B. B.....	28,2	3 369	33	3 346	10,0	12,0	—	11,2
B. S. B. B.....	33,5	4 597	45	4 530	13,8	16,0	—	15,3
B. S. B. B.....	39,5	6 123	59	6 056	18,0	21,0	—	20,4

Les trois points expérimentaux marqués d'un astérisque sont certainement entachés d'erreurs : ils ne sont pas situés sur la courbe. Pour les références des travaux expérimentaux, voir la bibliographie.

Manuscrit reçu le 4 octobre 1952.

## BIBLIOGRAPHIE.

- [1] TSIEN S. T., FARAGGI H., CHASTEL R. et VIGNERON L. — *C. R. Acad. Sc.*, 1946, **223**, 571.
- [2] VIGNERON L. — *Rev. Microscopie*, 1950, **2**, 26.
- [3] BOGAARDT M. et VIGNERON L. — *Fondamental mechanisms of photographic sensitivity. Proceedings of a symposium held at the University of Bristol in march 1950*, Butterworths scientific publications, London, 1951, p. 388.
- [4] BOGAARDT M. et VIGNERON L. — *J. Physique Rad.*, 1950, **11**, 652.
- [5] VIGNERON L. et BOGAARDT M. — *C. R. Acad. Sc.*, 1950, **230**, 2176.
- [6] VIGNERON L. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **232**, 1199.
- [7] VIGNERON L. et BOGAARDT M. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **233**, 941.
- [8] LATTÈS C. M. G., FOWLER P. H. et CÜER P. — *Proc. Phys. Soc.*, 1947, **59**, 883.
- [9] ROTBLAT J. — *Nature*, 1950, **165**, 387.
- [10] ROTBLAT J. — *Nature*, 1951, **167**, 550.
- [11] CATALA J. et GIBSON W. M. — *Nature*, 1951, **167**, 551.
- [12] GEIGER. — *Proc. Roy. Soc.*, 1910, **83**, 492 et 505.
- [13] BRADNER H., SMITH F. M., BARKAS W. H. et BISHOP A. S. — *Phys. Rev.*, 1950, **77**, 462.
- [14] BEARDEN J. A. et WATTS H. M. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 73.
- [15] WEBB J. H. — *Phys. Rev.*, 1948, **74**, 511.
- [16] CÜER P. — *C. R. Acad. Sc.*, 1946, **223**, 1121.
- [17] MANO M. G. — *C. R. Acad. Sc.*, 1933, **197**, 319; *Ann. de Physique*, 1934, **11**, 407.
- [18] LIVINGSTON M. S. et BETHE H. A. — *Rev. Mod. Physics*, 1937, **9**, 245.
- [19] NERESON N. et REINES F. — *Rev. Sc. Instr.*, 1950, **21**, 1934.
- [20] WARSHAW S. D. — *Phys. Rev.*, 1949, **74**, 511.
- [21] BLACKETT P. M. S. et LEES D. S. — *Proc. Roy. Soc.*, 1932, A **134**, 658.
- [22] BETHE H. A., BROWN L. M. et WALSKE M. C. — *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 413.
- [23] BETHE H. A. — *Ann. Physik*, 1930, **5**, 325.
- [24] BROWN L. M. — *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 297.
- [25] SIEGBAHN. — *Spektroskopie der Roentgenstrahlen*.
- [26] SLATER J. C. — *Phys. Rev.*, 1930, **36**, 57.
- [27] Notice du fabricant Ilford Ltd, août 1948.
- [28] BAKKER C. J. et SEGRÈ E. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 489.
- [29] FARAGGI H. — *C. R. Acad. Sc.*, 1950, **230**, 1398.
- [30] PANOFKY W. K. H. et FILLMORE F. L. — *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 57 (point moyen de leur série de mesures).
- [31] CÜER P. et JUNG J. J. — *J. Physique Rad.*, 1951, **12**, 52 S; *Science et Ind. Phot.*, 1951, **22**, 401 (lectures sur la courbe publiée).



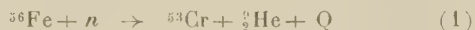
NON-OBSERVATION DE LA RÉACTION  $\text{Fe}(n, \alpha)\text{Cr}$  SOUS L'ACTION DES NEUTRONS THERMIQUESPar M<sup>me</sup> HENRIETTE FARAGGI,Service de Physique Nucléaire du Commissariat à l'Énergie atomique.  
Centre d'Études Nucléaires de Saclay,  
Gif-sur-Yvette (Seine-et-Oise).

**Sommaire.** — L'observation de la réaction  $\text{Fe}(n, \alpha)\text{Cr}$  sous l'action des neutrons lents ayant donné lieu à des résultats contradictoires, nous avons repris cette étude dans des conditions expérimentales aussi favorables que possible, permettant de dissiper tout équivoque. La réaction n'a pas été observée. Les expériences décrites permettent de fixer à la section efficace de cette réaction, si elle existe, une limite supérieure de  $10^{-29}$  cm<sup>2</sup>.

Les résultats positifs obtenus par d'autres auteurs peuvent être attribués à une mauvaise discrimination entre particules  $\alpha$  et protons dans des émulsions nucléaires.

La comparaison de la limite expérimentale obtenue et des prévisions théoriques, ainsi que les données concernant les valeurs des masses exactes et les énergies de liaison, permettent de conclure que la teneur en énergie de la réaction est certainement inférieure à 3,5 MeV et probablement nulle.

## La possibilité d'observer la réaction



sous l'action de neutrons thermiques a fait l'objet de travaux contradictoires [1] à [3]. En utilisant les neutrons rapides d'un cyclotron ralentis par la paraffine et des émulsions nucléaires imprégnées d'un sel organique de fer [1], Hanni et Rossel ont affirmé les premiers avoir observé la réaction (1) : l'énergie des particules  $\alpha$  émises aurait été de l'ordre de 5 MeV et la section efficace de l'ordre de  $4 \cdot 10^{-26}$  cm<sup>2</sup>. A peu près à la même époque et tout à fait indépendamment, nous avons entrepris la même recherche [2]; nous utilisions les neutrons thermiques de la pile de Châtillon et des émulsions nucléaires imprégnées d'un sel organique de fer. Nos résultats avaient été négatifs et nous avons indiqué que la réaction, si elle existait, avait une section efficace inférieure à  $6 \cdot 10^{-29}$  cm<sup>2</sup>. Depuis lors MM. Cüer et Longchamp [3] ont repris la même expérience, à l'aide des neutrons de la pile et d'émulsions nucléaires en contact avec une cible épaisse de fer. Ils affirment à nouveau l'existence de la réaction (1), avec une section efficace de l'ordre de  $1,7 \cdot 10^{-28}$  cm<sup>2</sup>. Ayant utilisé une cible de fer d'épaisseur supérieure au parcours présumé des particules  $\alpha$ , ils ne peuvent indiquer qu'une limite supérieure de l'énergie, de l'ordre de 5 MeV. Enfin, Hanni et Rossel [4] ont à nouveau confirmé leurs premiers résultats en indiquant toutefois une section efficace dix fois plus faible que dans leurs premières expériences,  $5 \cdot 10^{-27}$  cm<sup>2</sup>.

Dans le but d'éclaircir aussi nettement que possible cette situation confuse, nous avons repris à nouveau nos expériences, en cherchant à réaliser des conditions qui dissipent tout malentendu. Les résultats négatifs obtenus confirment nos premiers résultats et nous sommes en mesure d'affirmer aujourd'hui que la réaction (1), si elle

existe, a certainement une section efficace inférieure à  $10^{-29}$  cm<sup>2</sup>. L'efficacité de la méthode adoptée ne peut être mise en cause, car c'est en procédant dans les mêmes conditions que nous avons pu mettre très nettement en évidence [5] les réactions  $^{64}\text{Zn}(n, \alpha)^{61}\text{Ni}$  et  $^{67}\text{Zn}(n, \alpha)^{64}\text{Ni}$  sous l'action des neutrons thermiques, les sections efficaces étant respectivement  $1,5 \cdot 10^{-29}$  cm<sup>2</sup> et  $5,5 \cdot 10^{-30}$  cm<sup>2</sup>. Si la réaction (1) avait réellement une section efficace de l'ordre de  $10^{-28}$  cm<sup>2</sup>, nous n'aurions pu manquer de la déceler.

**1. Choix des conditions expérimentales.** — On sait que la teneur en énergie de réactions du type  $(n, \alpha)$  peut être relativement importante pour certains éléments. Dans ce cas, l'énergie cinétique acquise par la particule  $\alpha$  peut être assez grande pour lui permettre de franchir la barrière de potentiel avec une probabilité suffisante pour l'observation, même si le neutron incident est capturé à l'état thermique. Dans le cas du bore et du lithium, la réaction  $(n, \alpha)$  est prépondérante. Pour les noyaux plus lourds, la réaction  $(n, \gamma)$  est de beaucoup la plus probable. Toutefois, il n'est pas impossible d'espérer observer l'émission  $\alpha$  en compétition avec l'émission  $\gamma$ , si l'on dispose d'un détecteur suffisamment sensible et d'un flux suffisamment important de neutrons thermiques. L'utilisation des émulsions nucléaires et des neutrons fournis par une pile répond particulièrement bien à ces conditions.

On ne pourra caractériser avec certitude une réaction du type  $(n, \alpha)$  sous l'action des neutrons thermiques que si l'on peut prouver, soit que la réaction n'est pas due aux neutrons rapides, soit que les particules  $\alpha$  émises sont monocinétiques. En tout état de cause, les sections efficaces étant très faibles, les résultats expérimentaux portent sur de très petits nombres d'événements et les fluctuations statistiques sont importantes. Il faut

donc réaliser des conditions expérimentales permettant d'observer confortablement des sections efficaces de l'ordre de  $10^{-29} \text{ cm}^2$  pour pouvoir statuer sans ambiguïté sur l'existence ou la non-existence d'une réaction dont la section efficace annoncée est de l'ordre de  $10^{-28} \text{ cm}^2$ , donc gagner un facteur 6 par rapport aux conditions expérimentales de nos premières expériences. Nous avons obtenu ce résultat de la manière suivante.

1° FLUX DE NEUTRONS. — Il est évidemment nécessaire de disposer de flux totaux de neutrons aussi importants que possible, comportant un minimum de neutrons rapides. Les expériences de Hanni et Rossel, faites à l'aide de neutrons de cyclotron ralentis par paraffine, ne leur permettaient pas de dépasser  $7 \cdot 10^9$  neutrons/cm<sup>2</sup> sans que les émulsions ne soient complètement voilées par les rayons  $\gamma$  émis par la source. De plus, la présence d'un nombre important de neutrons rapides rendait nécessaires deux expériences, avec et sans cadmium, et les résultats portaient sur la différence de quatre expériences : avec et sans cadmium, avec et sans fer. On obtenait comme résultat définitif une statistique comportant des fluctuations importantes.

Dans nos premières expériences, nous avons utilisé les neutrons de la pile de Châtillon, ce qui nous avait permis d'atteindre des flux totaux de l'ordre de  $2 \cdot 10^{11}$  neutrons/cm<sup>2</sup>, avec des émulsions imprégnées, d'épaisseur 100  $\mu$ . Les développements classiques que nous utilisions alors ne nous permettaient pas de dépasser ce flux sans voiler complètement les émulsions par les  $\gamma$  de la pile et les électrons de décroissance du bromure d'argent de l'émulsion. Le résultat négatif était obtenu par différence entre les émulsions avec et sans fer. Compte tenu des fluctuations, cette différence était nulle. Nous arrivions ainsi à une limite supérieure de  $6 \cdot 10^{-29} \text{ cm}^2$ , ce qui excluait nettement les résultats de Hanni et Rossel.

Cüer et Longchamp ont utilisé, comme nous, les neutrons de la pile, avec un flux cinq fois plus faible que le nôtre. Par contre, le nombre de noyaux-cibles était nettement plus élevé, puisqu'il s'agissait d'une cible épaisse de fer. La différence entre les deux émulsions avec et sans fer est, d'après les auteurs, nettement supérieure aux fluctuations statistiques. Nous reviendrons sur ce point un peu plus loin.

Nous avons pu récemment mettre au point une nouvelle technique de développement des émulsions nucléaires irradiées à la pile [6] qui nous a servi pour la mise en évidence des réactions  $\text{Zn}(n, \alpha)\text{Ni}$  et qui permet de recevoir des flux totaux de neutrons pouvant aller jusqu'à  $3 \cdot 10^{12}$  neutrons/cm<sup>2</sup>. L'observation d'émulsions ayant reçu au total  $4 \cdot 10^{11}$  neutrons/cm<sup>2</sup>, soit 10 fois plus que dans l'expérience de Cüer et Longchamp et 50 fois plus que dans le cas de Hanni et Rossel, se fait alors dans des condi-

tions extrêmement confortables. Pour une section efficace de  $10^{-28} \text{ cm}^2$ , le nombre de trajectoires observées doit être, dans ce cas, très nettement supérieur à celui des traces parasites.

2° NOMBRE DE NOYAUX-CIBLES. — Il est évidemment nécessaire de disposer du plus grand nombre possible de noyaux-cibles par centimètre carré d'émulsion. Pour cela, la solution la plus favorable à première vue est d'utiliser une cible épaisse de fer, comme l'ont fait Longchamp et Cüer. Cependant, les résultats obtenus de cette manière ne sont pas concluants : en effet, l'épaisseur de la cible étant supérieure au parcours présumé des particules  $\alpha$  émises, il y a ralentissement dans la cible des particules provenant des couches profondes et l'on recueille dans l'émulsion nucléaire placée au contact des particules  $\alpha$  ayant toutes les énergies inférieures à l'énergie déterminée par le bilan de la réaction (1). Dans ces conditions, il n'est pas possible d'affirmer que la réaction observée a été provoquée par des neutrons thermiques; elle peut aussi bien avoir été provoquée par les neutrons rapides de toutes énergies accompagnant les neutrons thermiques émis par la pile. À ce point de vue, les résultats de Longchamp et Cüer ne sont pas concluants. Pour pouvoir trancher complètement dans le cas où l'on utilise une cible épaisse, il aurait fallu procéder à deux irradiations, avec et sans cadmium, de manière à pouvoir affirmer avec certitude que la réaction observée a bien été provoquée par des neutrons thermiques. Or, les émulsions exposées sous cadmium à des flux totaux de neutrons de pile de l'ordre de  $10^{11}$  neutrons thermiques/cm<sup>2</sup> présentent un voile supplémentaire intense dû à l'émission  $\beta$  et  $\gamma$  du cadmium et leur observation devient très pénible.

Il est donc préférable de renoncer à utiliser une cible épaisse et de se limiter à des cibles n'absorbant pratiquement pas les particules  $\alpha$ . Deux procédés sont utilisables : l'imprégnation de l'émulsion par un sel de fer ou l'utilisation d'un dépôt de fer d'épaisseur inférieure à 1 mg/cm<sup>2</sup>, soit inférieure à 5 mm d'air équivalent.

Nos premières expériences, ainsi que celles de Hanni et Rossel avaient utilisé des émulsions imprégnées. Le nombre de noyaux-cibles par centimètre carré est alors de l'ordre de  $5 \cdot 10^{18}$  neutrons/cm<sup>2</sup> pour des émulsions de 100  $\mu$ . Pour éviter au maximum l'opacité des émulsions exposées à des flux de l'ordre de  $4 \cdot 10^{11}$  neutrons/cm<sup>2</sup>, il est préférable de limiter l'épaisseur de l'émulsion à 50  $\mu$  : dans ces conditions, l'imprégnation ne permet pas d'obtenir un nombre suffisant de noyaux-cibles par centimètre carré et l'utilisation d'un dépôt mince devient préférable.

3° MODE OPÉRATOIRE. — En conclusion, nous avons procédé de la manière suivante :

a. Nous avons successivement utilisé deux cibles



minces déposées sur cuivre par évaporation thermique, suivant le procédé de MM. Prugne et Léger [7] <sup>(1)</sup>. Les dépôts de fer spectroscopiquement pur Johnson-Matthey avaient des épaisseurs respectives de 0,455 et 0,800 mg/cm<sup>2</sup>; l'absorption des particules  $\alpha$  dans de telles cibles était respectivement équivalente à 0,21 et 0,37 cm d'air.

b. Les cibles et les émulsions Ilford C 2, 50  $\mu$  étaient soigneusement déshydratées avant d'être mises en contact, afin d'éviter l'attaque de l'émulsion par le métal humide. Elles étaient ensuite mises en contact étroit et irradiées à la pile.

c. L'irradiation était faite dans une brique de plomb entourée de graphite et introduite dans le réflecteur de la pile par un des canaux d'irradiation. On irradiait en même temps une émulsion-témoin, une émulsion en contact avec la cible et une émulsion contenant des traces latentes de particules  $\alpha$  de polonium qui servait de témoin pour l'efficacité du développement. De plus, une feuille mince de manganèse étalonnée au préalable à l'aide d'une source naturelle de neutrons était jointe au paquet d'émulsions pour permettre une mesure précise et rapide des flux de neutrons thermiques reçus par les émulsions.

d. Les émulsions retirées de la pile étaient ensuite développées suivant le procédé précédemment décrit [5] que nous rappelons ici :

— Refroidissement des émulsions sèches à 4° C pendant 30 mn;

— Développement à 30° C pendant 4 mn dans le révélateur suivant (pour 1 l) :

Hydroquinone.....	0,5 g
Sulfite de Na.....	10
Carbonate de K.....	50
K Br à 10 pour 100.....	5 cm <sup>3</sup>

— Bain d'arrêt, fixage et lavage classiques.

Les émulsions ainsi obtenues étaient suffisamment transparentes pour permettre une observation commode. L'émulsion contenant les trajectoires  $\alpha$  de polonium permettait de vérifier qu'une bonne discrimination  $\alpha$ -proton était obtenue. Contrairement à l'observation de M. Longchamp, nous n'avons constaté aucune désensibilisation due au fer dans les plaques ainsi traitées.

e. Le dépouillement portait sur des surfaces égales de l'émulsion au fer et de l'émulsion témoin. Nous avons utilisé un microscope binoculaire Cooke, muni d'objectif à immersion Leitz et d'oculaires Cooke, le grossissement total étant de l'ordre de 1500 (1 division du micromètre = 0,741  $\mu$ ). Les mesures ont porté sur toutes les trajectoires de particules  $\alpha$  traversant la surface de l'émulsion et de longueur supérieure à 10  $\mu$ . Ceci permet de ne

pas tenir compte des trajectoires dues aux protons de la réaction  $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$  qui pourraient être accidentellement surdéveloppées, ainsi que des trajectoires de la réaction  $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$  dues aux traces de bore toujours présentes et mises en évidence par les flux très intenses de neutrons utilisés. Les trajectoires d'environ 40  $\mu$  de  $^6\text{Li}(n, \alpha)\text{H}^3$  dues aux traces de lithium qui contaminent toujours les émulsions non lavées à l'eau distillée, sont facilement identifiables par l'aspect caractéristique du couple  $\alpha$ -triton auquel elles donnent lieu; ces trajectoires constituent d'ailleurs un contrôle précieux de l'efficacité du développement et de la bonne qualité de la discrimination obtenue. Les trajectoires de protons projetés par les neutrons rapides se différencient aisément des trajectoires  $\alpha$ . Les trajectoires  $\alpha$  mesurées et comptées sont alors dues, soit à la réaction cherchée, soit à des traces parasites.

f. Le facteur de contraction des trajectoires obliques était établi à l'aide des trajectoires de polonium contenu dans l'une des émulsions-témoins et, par suite, établi dans les conditions mêmes de l'expérience. L'ensemble des mesures étant fait à l'aide du même microscope, l'étalonnage en microns des divisions du micromètre oculaire était inutile et l'erreur correspondante supprimée. Dans ces conditions, les seules erreurs restantes sur les mesures de parcours étaient dues aux erreurs de pointé des extrémités des trajectoires et aux fluctuations du pouvoir de ralentissement de l'émulsion. Un élargissement de l'ordre de 10 pour 100 pouvait être dû à l'absorption des particules  $\alpha$  dans la cible.

**2. Résultats.** — 1° CIBLE I. — Les dépouillements relatifs à la première cible (0,455 mg Fe/cm<sup>2</sup> exposé à 3,95.10<sup>11</sup> neutrons/cm<sup>2</sup>) ont porté sur 22,6 mm<sup>2</sup> d'émulsion en contact avec le fer et 22,6 mm<sup>2</sup> d'émulsion témoin. Il a été trouvé 16 traces dans l'émulsion « au fer » et 17 traces dans l'émulsion témoin, soit, aux fluctuations près, le même nombre de trajectoires. La répartition du nombre de traces en fonction de leur longueur, pour la cible et le témoin, ainsi que les différences correspondantes sont représentées figures 1, 2 et 3.

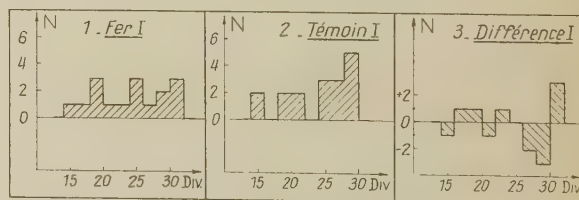


Fig. 1.

Fig. 2.

Fig. 3.

La différence est statistiquement nulle. Il n'y a donc pas, dans cette première série d'expériences, d'émission  $\alpha$  due au fer sous l'action des neutrons

<sup>(1)</sup> Nous tenons à remercier particulièrement MM. Prugne et Léger qui ont préparé ces cibles pour nous.

thermiques. Toutes les trajectoires ont une longueur inférieure à  $23\ \mu$ .

Si la section efficace était  $10^{-28}\ \text{cm}^2$ , valeur la plus faible donnée par Cuer et Longchamp, nous aurions dû trouver dans l'émulsion au fer un excès de 20 trajectoires par rapport à l'émulsion témoin, soit 36 traces au lieu de 16. La probabilité de trouver 16 au lieu de 36 étant inférieure à  $5 \cdot 10^{-3}$ , on peut en conclure qu'une telle valeur de la section efficace est à exclure. Dans le cas des valeurs de Hanni et Rossel, nous aurions dû trouver 50 fois plus, soit 1000 trajectoires, ce qui est absolument exclu.

2° CIBLE II. — La deuxième cible ( $0,800\ \text{mg/cm}^2$  de fer) a été exposée à  $3,80 \cdot 10^{11}$  neutrons/cm<sup>2</sup> au total. Le dépouillement a porté sur  $23\ \text{mm}^2$  d'émulsion « au fer » et d'émulsion témoin. Nous avons trouvé 10 trajectoires  $\alpha$  dans l'émulsion « au fer » contre 8 dans l'émulsion témoin (fig. 4, 5 et 6).

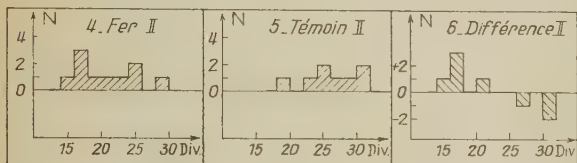


Fig. 4.

Fig. 5.

Fig. 6.

Ici encore la différence est nulle, bien que le nombre de noyaux-cibles soit deux fois plus grand que dans la première série. D'autre part, nous avons utilisé pour cette deuxième série une boîte de plaques de coulée plus récente que dans le premier cas, pour diminuer la valeur absolue du nombre des traces de contamination. Bien que ce nombre soit plus faible, on retrouve exactement les mêmes fréquences dans l'émulsion au fer et dans l'émulsion témoin. Toutes les trajectoires ont une longueur inférieure à  $23\ \mu$ .

Avec la section efficace de Cuer et Longchamp, nous aurions dû trouver un excès de 35 trajectoires dans l'émulsion au fer, c'est-à-dire 45 traces au lieu de 10. Ici encore, la différence est très supérieure aux fluctuations possibles, la probabilité de trouver 10 au lieu de 45 étant inférieure à  $10^{-7}$ . Avec la section efficace de Hanni et Rossel, nous aurions dû trouver 1700 trajectoires, soit un peu plus d'une trace pour deux champs microscopiques. Il est nettement impossible de laisser échapper un effet aussi important.

Si l'on ajoute que les trajectoires que l'on aurait dû voir auraient dû former un groupe de 20, 35, 1000 ou 1700 traces de même longueur (étant donné que nous avons utilisé des cibles minces), il est absolument impossible d'admettre que des trajectoires aussi nombreuses et aussi caractéristiques aient pu nous échapper.

Nous sommes donc obligés de conclure, conformément à nos premières expériences, que la section efficace de la réaction (1) n'est ni  $5 \cdot 10^{-27}\ \text{cm}^2$ , valeur de Hanni et Rossel, ni  $2 \cdot 10^{-28}\ \text{cm}^2$ , valeur de Cuer et Longchamp; mais certainement très inférieure à ces deux nombres, en admettant que la réaction soit possible.

3° UTILISATION D'UNE CIBLE ÉPAISSE. — Nous avons fait un dernier essai pour essayer de retrouver les résultats des autres expérimentateurs. Nous avons utilisé un flux de neutrons environ deux fois plus grand que dans les deux premières expériences et une cible épaisse de fer. La cible était une plaquette de fer pur Johnson Matthey et le flux de  $9,7 \cdot 10^{11}$  neutrons/cm<sup>2</sup>. Les irradiations, développements et dépouillements étant les mêmes que précédemment, il a été trouvé 6 trajectoires  $\alpha$  pour  $11\ \text{mm}^2$  d'émulsion. L'émulsion étant de même coulée que le témoin de l'expérience II, on peut admettre que les 8 traces trouvées dans  $23\ \text{mm}^2$  de témoin irradiées par  $3,9 \cdot 10^{11}$  neutrons auraient été équivalentes à 9 traces pour  $11\ \text{mm}^2$  irradiés à  $9,7 \cdot 10^{11}$ . On trouve donc 6 traces dans l'émulsion au fer contre 9 traces de témoin équivalent : la différence est encore nulle.

Il est facile de constater que le nombre de trajectoires  $\alpha$  observées par centimètre carré d'émulsion est pratiquement indépendant du flux de neutrons utilisé et du nombre de noyaux-cibles de fer. Il est alors nécessaire de conclure que ces trajectoires ne sont liées, ni à l'action des neutrons, ni à la présence de fer, et qu'elles constituent une contamination constante des émulsions nucléaires.

Si la section efficace de la réaction (1) était  $10^{-28}\ \text{cm}^2$  et si l'énergie des  $\alpha$  était 5 MeV, nous aurions dû trouver, pour  $11\ \text{mm}^2$  d'émulsion irradiée par  $9,7 \cdot 10^{11}$  neutrons/cm<sup>2</sup>, 114 trajectoires  $\alpha$ . La probabilité de trouver 6 traces au lieu de 114 est inférieure à  $10^{-10}$ . Pour une section efficace de l'ordre de  $5 \cdot 10^{-27}\ \text{cm}^2$ , nous aurions dû observer près de 5 traces par champ microscopique, ce qui est encore une fois exclu.

L'ensemble des résultats est rassemblé dans le tableau A. Il ressort nettement qu'aucune émission  $\alpha$  attribuable au fer n'a été observée, quelles qu'aient été les conditions expérimentales. Les marges d'erreur indiquées correspondent à l'écart type d'une loi de Gauss, bien que celle-ci soit assez approchée pour des nombres aussi petits. L'aspect négatif des résultats n'en est pas moins évident.

En conclusion, il est nettement prouvé que les trajectoires  $\alpha$  observées ne sont pas dues à la réaction (1) et le fait qu'elles soient indépendantes du flux de neutrons utilisé indiquent qu'elles sont essentiellement constituées par des contaminations radioactives.



TABLEAU A.

	Nature de la cible.				
	Fer I.	Témoin I.	Fer II.	Témoin II.	Fer épais.
Épaisseur du dépôt (mg/cm <sup>2</sup> ).....	0,455	0	0,800	0	2 300
Flux du neutrons (par cm <sup>2</sup> ).....	3,95.10 <sup>11</sup>	3,95.10 <sup>11</sup>	3,80.10 <sup>11</sup>	3,80.10 <sup>11</sup>	9,7.10 <sup>11</sup>
Surface explorée (mm <sup>2</sup> ).....	22,6	22,6	23	23	11
Nombre de trajectoires.....	16 ± 4	17 ± 4	10 ± 3	8 ± 3	6 ± 3
Différence Fer-témoin.....	-1 ± 5		+ 2 ± 4		- 3 ± 4

4° LIMITES SUPÉRIEURES DE SECTION EFFICACE. — En partant des résultats indiqués dans le tableau A, on peut fixer des limites supérieures à la section efficace de la réaction (1).

Dans la première expérience, il a été trouvé moins de 5 traces significatives, ce qui conduit à

$$\sigma_2'' < 2 \cdot 10^{-29} \text{ cm}^2.$$

Dans la deuxième, il a été trouvé moins de 4 trajectoires, c'est-à-dire

$$\sigma_2'' < 10^{-29} \text{ cm}^2.$$

Dans le cas de la cible épaisse, il a été trouvé moins de 4 trajectoires. Si les  $\alpha$  émis avaient une énergie de 5 MeV, la section efficace devrait être inférieure à  $3 \cdot 10^{-30} \text{ cm}^2$ .

La section efficace de la réaction (1) est donc certainement inférieure à  $10^{-29} \text{ cm}^2$ , et probablement inférieure à  $3 \cdot 10^{-30} \text{ cm}^2$  pour des  $\alpha$  de 5 MeV.

3. Discussion. — Il est permis de chercher pour quelles raisons d'autres auteurs ont cru observer la réaction (1), étant données les conditions expérimentales dans lesquelles ils étaient placés.

1° CAS DES EXPÉRIENCES LONGCHAMP-CÜER. — Dans toutes les émulsions, on peut observer un certain nombre de trajectoires isolées dues à la contamination radioactive de la gélatine et du verre du support. Le nombre de ces traces peut varier assez considérablement d'une émulsion à l'autre, suivant l'origine des gélatines utilisées. La teneur en radioéléments d'une émulsion donnée est donc un facteur particulièrement fluctuant de la composition des émulsions. D'autre part, le nombre de trajectoires  $\alpha$  émises par ces radioéléments augmente régulièrement au cours du temps, et le nombre de traces de contamination dépend de l'âge de l'émulsion. Il est donc nécessaire de comparer des émulsions de même âge et de même origine et il est prudent d'admettre la possibilité de fluctuations importantes.

Il est possible de calculer [8] qu'au bout d'un mois environ après la fabrication de l'émulsion on ne peut trouver sous forme de trajectoires isolées que les particules émises par les radioéléments suivants : UI, UII, Io, Po, Th, Rd Th, Ac U, Pa, Rd Ac. Les autres éléments ayant des périodes plus courtes seront associés sous forme d'« étoiles »

de filiation radioactive. Il en résulte que la longueur la plus grande possible pour une trajectoire  $\alpha$  isolée est d'environ  $27 \mu$  après un mois et  $23 \mu$  après 6 mois, Rd Th et Rd Ac s'étant associés à leurs descendants.

Si la réaction ( $n, \alpha$ ) que l'on recherche donne naissance à des particules  $\alpha$  de plus de  $27 \mu$  (ou de plus de  $23 \mu$  si l'émulsion est âgée de plus de six mois), on pourra affirmer sans ambiguïté que les particules  $\alpha$  sont caractéristiques de la cible. Le cas s'est présenté pour nous quand nous avons mis en évidence les réactions  $^{64}\text{Zn}(n, \alpha)$ ,  $^{64}\text{Ni}$  et  $^{67}\text{Zn}(n, \alpha)$   $^{64}\text{Ni}$  [5]. Mais si les particules  $\alpha$  présumées ont un parcours inférieur à  $27 \mu$  (ou à  $23 \mu$  pour des émulsions de plus de 6 mois) et qu'on utilise une cible extérieure à l'émulsion, on ne pourra affirmer que la réaction existe qu'à deux conditions :

a. Les particules  $\alpha$  émises forment un groupe monocinétique, car les traces de contamination n'étant comptées que si elles traversent la surface ont une distribution continue de longueur entre 0 et  $27 \mu$ , et

b. La fréquence de ces traces est de beaucoup supérieure à la fréquence observée dans le témoin.

Dans les expériences de Longchamp et Cüer, aucune de ces conditions n'est parfaitement remplie. La première ne peut l'être, puisque les auteurs ont utilisé une cible épaisse et la seconde ne l'est pas, en dépit de la démonstration invoquée. En effet, les auteurs basent leur démonstration de l'existence de la réaction (1) sur les faits suivants : Ils ont dépouillé  $17 \text{ mm}^2$  d'émulsion en contact avec le fer et  $17 \text{ mm}^2$  d'émulsion témoin en retenant les trajectoires comprises entre 9 et  $33 \mu$ . Ils ont trouvé 22 trajectoires dans l'émulsion-cible contre 6 dans le témoin. Il reste à prouver que cette différence est significative. Pour cela, il a été dépouillé  $250 \text{ mm}^2$  d'émulsion témoin, et les résultats groupés par sections de  $17 \text{ mm}^2$ ; seulement, cette fois, toutes les traces de longueur supérieure à  $9 \mu$  ont été mesurées, sans limite supérieure. On trouve alors entre 12 et 22 traces par section de  $17 \text{ mm}^2$ . Ici, M. Longchamp admet sans justification que les traces de longueur comprise entre 9 et  $33 \mu$  forment le  $1/3$  du nombre de traces de toutes longueurs. La distribution de longueur des traces trouvées dans le témoin n'est pas indiquée. Il en

conclut que le nombre moyen de traces de fond pour  $17 \text{ mm}^2$  étant de 6, les 22 traces trouvées dans le cas du fer sont significatives. Or, en toute rigueur, il est faux de dire que les traces comprises entre 9 et  $33 \mu$  forment le  $1/3$  des traces isolées de toutes longueurs. Comme nous l'avons vu, toutes les traces isolées doivent avoir des parcours inférieurs à  $33 \mu$ .

D'ailleurs, tant au cours de recherches sur la réaction  $(n, \alpha)$  du zinc [5] qu'au cours de la présente étude, il nous a été donné de dépouiller environ  $220 \text{ mm}^2$  d'émulsion sans rencontrer une seule trace  $\alpha$  de longueur supérieure à  $27 \mu$  dans des émulsions irradiées en moyenne à  $7 \cdot 10^{11}$  neutrons/cm<sup>2</sup>, émulsion d'âges et de coulées différents. Si MM. Cüer et Longchamp ont effectivement trouvé des trajectoires  $\alpha$  plus longues, elles n'auraient dû former qu'un pourcentage extrêmement faible du nombre total des trajectoires isolées (correspondant, par exemple, à un événement cosmique); s'ils en ont trouvé effectivement les  $2/3$  du nombre total, il faut nécessairement admettre que par suite d'une mauvaise discrimination, ils ont été amenés à confondre des protons projetés ou des couples  $\alpha$ -tritons (dus à la contamination par lithium) avec des trajectoires  $\alpha$ . Le développement des émulsions E 1 et D 1 utilisées n'est pas indiqué. Si une bonne discrimination n'est pas obtenue, il est très difficile, même pour un observateur exercé, de ne pas assimiler quelquefois un proton surdéveloppé à un  $\alpha$  sous-développé, et cette difficulté est plus grande encore dans les émulsions D 1 ou E 1 qui donnent des  $\alpha$  peu marqués, que dans les C 2 que nous utilisons habituellement. Il est d'ailleurs assez significatif que les résultats « positifs » obtenus par M. Longchamp sont ceux des émulsions D 1 qui donnent les trajectoires  $\alpha$  les plus discontinues, tandis que les résultats obtenus avec les émulsions E 1 sont, de l'avis de l'auteur lui-même, peu probants.

Le raisonnement invoqué pour la mise en évidence de la réaction (1) portant essentiellement sur le fait que les traces  $\alpha$  de moins de  $33 \mu$  forment le  $1/3$  du nombre total des traces isolées, nous voyons donc que la démonstration n'en est pas valable. Si toutes les traces isolées ont moins de  $33 \mu$ , il n'y a pas de différence significative entre les 23 traces trouvées dans l'émulsion en contact avec la cible et les 22 traces trouvées dans une des sections de  $17 \text{ mm}^2$  des émulsions témoins; si elles ont plus de  $33 \mu$ , c'est qu'il y a eu confusion entre  $\alpha$  et proton. Dans l'un et l'autre cas, il est nécessaire de conclure que les expériences de MM. Cüer et Longchamp n'apportent pas de preuve flagrante de l'existence de la réaction (1).

2° CAS DES EXPÉRIENCES HÄNNI-ROSSEL. — Les expériences de Hänni et Rossel ont été faites dans des circonstances particulièrement difficiles. Les sources de neutrons utilisées ont été successivement

une source Ra-Be, les neutrons obtenus au cyclotron par réaction des protons de 7 MeV sur le cuivre et ceux de  $(\text{D} + \text{Be})$  obtenus avec un accélérateur haute tension. Dans tous les cas, les neutrons rapides sont ralentis par paraffine et les temps d'irradiation sont de plusieurs jours. Les émulsions contiennent, par suite, un nombre important de protons projetés et les traces latentes des trajectoires ont subi un début d'effacement (fading). En outre, le développement des émulsions, de l'avis des auteurs eux-mêmes, n'est pas absolument homogène en profondeur et les émulsions au fer sont, dans l'ensemble, surdéveloppées par rapport aux émulsions témoins (influence du pH de la solution d'imprégnation). Il en résulte une assez grande difficulté à différencier les trajectoires  $\alpha$  des trajectoires dues aux protons projetés. Les auteurs pensent avoir suffisamment éliminé ces causes d'erreurs pour affirmer que les différences entre les quatre séries de mesures (avec et sans cadmium, avec et sans fer) ont une signification en soi : et, en effet, le bilan des quatre mesures semble se traduire constamment par un excès de trajectoires de « particules  $\alpha$  » dans les émulsions au fer exposées sans cadmium.

Pour expliquer ce bilan, il faut admettre que, par suite de très grandes difficultés expérimentales, les auteurs ont eu tendance à assimiler des trajectoires de protons à des trajectoires  $\alpha$  préférentiellement dans les émulsions au fer sans cadmium. Ceci pourrait être expliqué de la manière suivante :

a. Les émulsions au fer ayant un pH supérieur à celui des émulsions témoins ont subi une régression moins importante des traces de protons projetés et un surdéveloppement [9]; par suite, des traces de protons peuvent être prises pour des particules  $\alpha$  dans l'émulsion au fer (où leur densité de grains sera plus grande), tandis que dans l'émulsion sans fer (par suite de l'effacement et du sous-développement), ces mêmes protons auront une densité de grains plus faible, et seront comptés comme protons;

b. Les émulsions exposées dans le cadmium ont un voile  $\gamma$  plus important (dû aux  $\gamma$  de capture du cadmium) que les émulsions sans cadmium : ce voile peut masquer les trajectoires d'un certain nombre de protons assimilés à des trajectoires  $\alpha$ , entraînant une sous-estimation du nombre de trajectoires dans l'émulsion avec cadmium. Ces deux effets jouant dans le même sens, on obtiendra un excès de « trajectoires  $\alpha$  » dans l'émulsion au fer, sans cadmium, par rapport aux émulsions au fer, avec cadmium, et aux émulsions témoins moins développées. Ces trajectoires doivent être en réalité des protons.

En conclusion, nous pouvons affirmer que les résultats positifs obtenus par d'autres auteurs relativement à la mise en évidence de la réaction



tion Fe ( $n, \alpha$ ) Cr sous l'action des neutrons thermiques doivent être expliqués, soit par une sous-estimation des fluctuations possibles sur le nombre de trajectoires de contamination radioactive, soit par une confusion entre trajectoires  $\alpha$  et trajectoires de protons, liée à une mauvaise discrimination.

**4. Comparaison avec la théorie.** — On peut essayer de calculer théoriquement la section efficace de la réaction (1) : pour cela, il est nécessaire de connaître, au moins approximativement, la teneur en énergie de la réaction. On dispose pour cela de deux sortes de données : les masses exactes de noyaux mesurées au spectrographe de masse et les énergies de liaison des derniers nucléons dans la région du fer et du chrome.

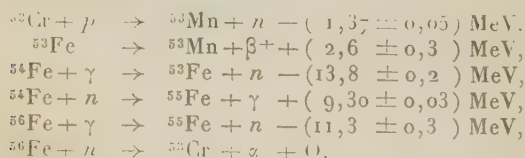
**1° TENEUR EN ÉNERGIE DE LA RÉACTION.** — Toutes les recherches entreprises sur la réaction (1) ont pour origine les tables de masses parues aux environs de 1948 [10]. D'après les masses admises alors pour le fer et le chrome, on pouvait calculer pour la réaction une teneur en énergie de l'ordre de 5 MeV.

Depuis lors, de nouvelles mesures de masses exactes ont été publiées par divers auteurs [11] et les teneurs en énergie de la réaction (1) que l'on peut déduire de ces nouvelles valeurs sont très inférieures à 5 MeV. Le tableau B reproduit les résultats obtenus en combinant deux à deux les différentes valeurs. On peut voir que, si l'on utilise les chiffres de Nier et de Duckworth qui semblent les plus précis et les plus concordants, la teneur en énergie de la réaction est probablement nulle. Les chiffres d'Ogata, moins précis, conduisent à une teneur en énergie de l'ordre de 3 MeV. Les teneurs en énergie sont indiquées en millièmes d'unités de masses nucléaires, et les masses exactes en unités de masses nucléaires.

TABLEAU B.

		Fe.		
		55,95272 ± 10 (Nier).	55,95285 ± 16 (Duckworth).	55,95340 ± 27 (Ogata).
<sup>53</sup> Cr	52,95772 ± 8 (Nier)	{	0,09 ± 0,18	0,22 ± 0,24
	52,95527 ± 44 (Ogata)		0,77 ± 0,54	0,77 ± 0,54
<sup>54</sup> Cr	52,95772 ± 8 (Nier)	{	0,09 ± 0,18	0,22 ± 0,24
	52,95527 ± 44 (Ogata)		0,77 ± 0,54	0,77 ± 0,54

Il est possible également de calculer la teneur en énergie de la réaction en formant des cycles de réaction nucléaires, utilisant les résultats obtenus récemment par la mesure des  $\gamma$  de capture, des seuils de réactions ( $\gamma, n$ ) ou ( $p, n$ ) et de l'énergie des réactions ( $d, p$ ). On peut alors établir le cycle suivant [12] :



On obtient ainsi

$$Q = -0,45 \pm 0,90 \text{ MeV.}$$

Nous voyons donc que, si l'on excepte la détermination par Ogata de la masse de <sup>53</sup>Cr, l'ensemble de ces déterminations conduit, pour la réaction (1), à une teneur en énergie voisine de 0. Seuls, les calculs faits avec les mesures d'Ogata conduisent à une teneur en énergie de l'ordre de 3 MeV. En tout état de cause, les valeurs antérieures, de l'ordre de 5 MeV, semblent exclues par les nouvelles mesures. Un argument en faveur d'une teneur en énergie nulle peut être tiré de la concordance entre les valeurs des masses mesurées par Nier, qui semblent les plus précises et les plus cohérentes et les valeurs déduites des énergies de liaison.

Si la teneur en énergie était nulle, il n'y aurait rien d'étonnant à ce que nous n'ayions pas pu observer la réaction (1) sous l'action des neutrons thermiques. Si elle est de l'ordre de 3 MeV ou de 5 MeV, on peut essayer de calculer théoriquement la section efficace et confronter les valeurs obtenues avec le résultat expérimental que nous avons obtenu, à savoir

$$\sigma''_{\gamma} < 10^{-29} \text{ cm}^2.$$

**2° ÉVALUATION DE LA SECTION EFFICACE.** — Il est possible d'évaluer théoriquement l'ordre de grandeur de la section efficace du processus ( $n, \alpha$ )  $\sigma''_{\gamma}$  étant la section efficace ( $n, \gamma$ ), nous avons

$$\sigma''_{\gamma} = \sigma''_{\gamma} \frac{\Gamma_{\alpha}}{\Gamma_{\gamma}},$$

où  $\Gamma_{\alpha}$  et  $\Gamma_{\gamma}$  sont les « largeurs » des niveaux du noyau composé relatives à l'émission d'une particule  $\alpha$  ou d'un photon. Nous allons évaluer ces différents termes.

a.  $\sigma''_{\gamma}$  : Le processus ( $n, \gamma$ ) étant de beaucoup le plus probable,  $\sigma''_{\gamma}$  est pratiquement égal à la section efficace de capture, qui a été mesurée expérimentalement [13]. Pour l'isotope <sup>56</sup>Fe, elle est de

$$\sigma''_{\gamma} = (2,6 \pm 0,2) \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2.$$

b.  $\Gamma_{\gamma}$  : La largeur relative à l'émission d'un photon pour les noyaux de la région du fer est de l'ordre de quelques électrons-volts [14].

c.  $\Gamma_{\alpha}$  : La largeur relative à l'émission d'une particule  $\alpha$  est donnée théoriquement [14] par la formule

$$\Gamma_{\gamma} = \frac{D^*}{2\pi} T^2,$$

où  $D^*$  est une caractéristique nucléaire de l'ordre de grandeur de la distance entre niveaux de même parité et de même moment angulaire et où  $T^2$  est la pénétrabilité.

La section efficace  $\sigma''_{\alpha}$  se met ainsi sous la forme

$$\sigma''_{\alpha} = \frac{2,6 \cdot 10^{-24}}{2} \frac{D^*}{\Gamma_{\gamma}} T^2.$$

Nous allons chercher à évaluer séparément le terme  $\frac{D^*}{\Gamma_\gamma}$ , caractéristique du noyau, et le terme  $T^\alpha$  qui dépend de l'énergie de la particule  $\alpha$  émise.

**Détermination de  $\frac{D^*}{\Gamma_\gamma}$ .** — La distance  $D$  entre les niveaux du noyau  $\text{Fe}$  peut être évaluée à partir des courbes de variations de la section efficace d'absorption des neutrons en fonction de l'énergie de ces neutrons [13]. On peut voir sur ces courbes que l'espacement est de l'ordre de 40 keV. Le neutron capturé par le noyau  $^{56}\text{Fe}$  dans l'état  $S$  donne au noyau composé un état  $S_{\frac{1}{2}}$ . L'espacement  $D^*$  entre les niveaux  $S_{\frac{1}{2}}$  du noyau composé doit être de l'ordre de quelques centaines de kiloélectronvolts, si l'espacement moyen est de l'ordre de 40 keV.

On peut obtenir, d'autre part, une estimation du produit  $D^*\Gamma_\gamma$  à partir de la valeur mesurée de  $\sigma_Y^n$  si l'on utilise la formule de Breit-Wigner pour la capture des neutrons thermiques. On peut lire sur la courbe de variation de  $\sigma_Y^n$  en fonction de l'énergie des neutrons [13] que la première résonance est située aux environs de 8 keV. Si l'on admet que c'est cette résonance qui intervient pour la capture des neutrons thermiques, la formule de Breit-Wigner pour les énergies situées loin de la résonance s'écrit

$$\sigma_Y^n = \frac{\lambda^2}{4\pi^2} \frac{\Gamma_n \Gamma_\gamma}{E_R^2},$$

où  $\frac{\lambda}{2\pi}$  est la longueur d'onde des neutrons thermiques,  $E_R$  l'énergie à la résonance et  $\Gamma_n$  la largeur relative à l'émission d'un neutron. D'après [14],

$$\Gamma_n = \frac{D^*}{2\pi} \frac{4}{\frac{\lambda}{2\pi}}$$

$\frac{\lambda}{2\pi}$  et  $\frac{\lambda}{2\pi}$  sont les longueurs d'onde du neutron à l'intérieur et à l'extérieur du noyau. En remplaçant  $\Gamma_n$  par sa valeur, il vient

$$\sigma_Y^n = 2 \frac{\lambda}{2\pi} \frac{\Lambda}{2\pi} \frac{D^* \Gamma_\gamma}{E_R^2}.$$

Nous avons vu que

$$E_R \sim 8 \text{ keV}, \quad \sigma_Y^n \sim 2,6 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2,$$

pour un neutron thermique

$$\frac{\lambda}{2\pi} \sim 2,9 \cdot 10^{-9}, \quad \frac{\Lambda}{2\pi} \sim 10^{-13}.$$

On obtient ainsi

$$D^* \Gamma_\gamma \sim 4 \cdot 10^5.$$

Si l'on prend  $\Gamma_\gamma \sim 2 \text{ eV}$ , on obtient

$$D^* \sim 200 \text{ keV} \quad \text{et} \quad \frac{D^*}{\Gamma_\gamma} \sim 10^5.$$

Ceci n'est qu'un ordre de grandeur, car  $\Gamma_\gamma$  peut varier de quelques électrons-volts et  $D^*$  de quelques centaines de kiloélectrons-volts. Si, par exemple,  $\Gamma_\gamma$  passe de 1 à 5 eV,  $D^*$  passera de 400 à 80 keV et  $\frac{D^*}{\Gamma_\gamma}$  peut alors varier d'un facteur 5, tout en restant dans des limites raisonnables. En admettant  $\frac{D^*}{\Gamma_\gamma} \sim 10^5$ , il vient :

$$\sigma_2^n \sim 2,6 \cdot 10^{-24} \times \frac{10^9}{2\pi} \times T^\alpha;$$

$$\sigma_2^n \sim 4 \cdot 10^{-20} T^\alpha \text{ cm}^2$$

ou encore  $4 \cdot 10^4 T^\alpha$  en barns.

Il nous reste à évaluer les pénétrabilités pour les différentes énergies de la particule émise.

**Détermination de  $T^\alpha$ .** — Comme nous ne pouvons prétendre qu'à un ordre de grandeur, nous pouvons nous contenter d'évaluer  $T^\alpha$  à partir de la formule simple de Gamov [15]

$$T^\alpha = e^{-\frac{8Ze^2}{h\sqrt{E}}} \left[ \arccos \sqrt{\frac{E}{B}} - \sqrt{\frac{E}{B}} \left( 1 - \frac{E}{B} \right) \right],$$

où  $Z$  est le nombre de charge du noyau,  $e$  la charge élémentaire,  $E$  l'énergie de la particule  $\alpha$  et  $B$  la hauteur de la barrière de potentiel, pour les particules  $\alpha$ .

Dans la réaction  $^{56}\text{Fe}(n, \alpha)^{53}\text{Cr}$ , la particule  $\alpha$  est émise avec un moment angulaire  $l = 1$  ( $^{56}\text{Fe} = 0$ , pair; neutron  $s$ ;  $^{53}\text{Cr} = p_{\frac{3}{2}}$ , impair), mais l'effet de la barrière centrifuge est faible (facteur 1,5 environ) et nous n'en avons pas tenu compte.

Pour appliquer la formule de Gamov, nous devons fixer la valeur du rayon effectif du noyau [14]. Nous avons

$$R = r_0 A^{\frac{1}{3}} + \rho.$$

Nous avons fait le calcul pour trois valeurs différentes de  $R$

$$R_1 = 6,08 \cdot 10^{-13} \text{ cm},$$

correspondant à

$$r_0 = 1,3 \cdot 10^{-13} \text{ cm} \quad \text{et} \quad \rho = 1,2 \cdot 10^{-13} \text{ cm},$$

$$R_2 = 6,83 \cdot 10^{-13} \text{ cm},$$

correspondant à

$$r_0 = 1,5 \cdot 10^{-13} \text{ cm} \quad \text{et} \quad \rho = 1,2 \cdot 10^{-13} \text{ cm},$$

$$R_3 = 5,56 \cdot 10^{-13} \text{ cm}$$

correspondant à

$$r_0 = 1,48 \cdot 10^{-13} \text{ cm} \quad \text{et} \quad \rho = 0.$$

Les valeurs de  $T^\alpha$  sont reproduites dans le tableau C pour des valeurs différentes de l'énergie  $E$  de la particule  $\alpha$



TABLEAU C.

R.	E (MeV).				
	1.	2,5.	3.	3,5.	5.
$R_1...$	$10^{-25}$	$2.10^{-11}$	$2.10^{-9}$	$8.10^{-8}$	$10^{-4}$
$R_2...$	$7.10^{-25}$	$10^{-10}$	$10^{-8}$	$5.10^{-7}$	$6.10^{-4}$
$R_3...$	$2.10^{-26}$	$5.10^{-12}$	$6.10^{-10}$	$2.10^{-8}$	$4.10^{-5}$

3° RÉSULTATS ET CONCLUSIONS. — La section efficace est, d'après la formule établie ci-dessus,

$$\sigma_{\alpha}^n = 4.10^4 T^{\alpha} \text{ en barns.}$$

Les expériences que nous avons faites conduisent à

$$\sigma_{\alpha}^n < 10^{-5} \text{ barns.}$$

La limite expérimentale pour  $T^{\alpha}$  est donc

$$T^{\alpha} < 2,5.10^{-10}.$$

D'après le tableau C, nous voyons que cette limite de pénétrabilité n'est compatible qu'avec  $E_{\alpha} \leq 3$  MeV. Les calculs étant largement approchés peuvent être en erreur d'un facteur 10 et il n'est pas absolument exclu que nos résultats soient compatibles avec l'émission d'un  $\alpha$  d'énergie légèrement inférieure ou égale à 3 MeV.

En tout état de cause, il est évident que l'émission d'un  $\alpha$  de 5 MeV conduirait à une section efficace de l'ordre de quelques barns et que, dans ces conditions, la réaction devrait être très facile à observer par n'importe quelle technique.

Le fait d'avoir trouvé  $\sigma < 10^{-20} \text{ cm}^2$  permet donc d'affirmer sans ambiguïté que la teneur en énergie de la réaction (1) est certainement inférieure à 3,5 MeV. Ce résultat permet également de dire que les mesures de masses faites aux environs de 1948 [10] et conduisant à  $Q \sim 5$  MeV sont certainement fausses. Par ailleurs, il est également probable que les mesures des masses de Ogata contiennent des erreurs supérieures aux erreurs indiquées et que les masses de Nier et de Duckworth sont plus exactes. L'accord entre les valeurs déduites des énergies de liaison, les valeurs des masses de Nier et la non-observation de la réaction (1) dans nos expériences conduisent à penser que la teneur en énergie de cette réaction est très probablement nulle.

Je tiens à remercier M. A. Berthelot, Chef du Service de Physique Nucléaire du Commissariat à l'Énergie atomique, pour l'intérêt qu'il a pris à ce travail, et le Service de la Pile de Châtillon qui a permis l'irradiation des émulsions. M<sup>lle</sup> A. Bonnet, agent technique du C. E. A., a collaboré avec beaucoup de dévouement à la réalisation pratique des expériences. M. J. Horowitz, chef du Service de Physique Mathématique du C. E. A., m'a prodigué, avec une grande patience, des conseils éclairés sur les calculs théoriques des sections efficaces. Je suis heureuse de leur témoigner ici ma reconnaissance.

Manuscrit reçu le 8 novembre 1952.

#### BIBLIOGRAPHIE.

- [1] HANNI et ROSSEL. — *Helv. Phys. Acta*, 1950, **23**, 513.
- [2] FARAGGI. — *C. R. Acad. Sc.*, 1950, **231**, 1475.
- [3] CÜER et LONGCHAMP. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 41. S. LONGCHAMP. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 326.
- [4] HANNI et ROSSEL. — *Helv. Phys. Acta*, 1952, **25**, 521.
- [5] FARAGGI et BERNAS. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **234**, 1684. FARAGGI, BERNAS et BONNET. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **235**, 425.
- [6] FARAGGI, BONNET et COHEN. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 105 A.
- [7] PRUGNE et LÉGER. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 129 A.
- [8] FLAMENT. — *Bull. du Centre de Physique Nucléaire de l'Université de Bruxelles*, août 1948, n° 3.
- [9] ALBOUY et FARAGGI. — *J. Physique Rad.*, 1949, **10**, 105.
- [10] BETHE. — *Elementary Nuclear Theory*, 1947. FERMI. — *Nuclear Physics*, 1948.
- [11] OGATA. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 200. DUCKWORTH et PRESTON. — *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 402. NIER et al. — *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 409.
- [12] On trouvera l'ensemble des références correspondant à ce cycle dans l'article de WAPSTRA. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 837 et dans celui de HARVEY. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 353.
- [13] Neutron cross-section. *A. E. C. U.*, 2040, 15 mai 1952.
- [14] BLATT et WEISSKOPFF. — *Theoretical Nuclear Physics*, New-York, 1952.
- [15] BETHE. — *Rev. Mod. Physics*, 1937, **9**, 69.

## LES GERBES D'AUGER DANS L'ATMOSPHERE

Par ALICE DAUDIN et JEAN DAUDIN.

Observatoire du Pic du Midi, Bagnères-de-Bigorre.

**Sommaire.** — Les grandes gerbes d'Auger ont été étudiées pendant deux ans sur 5 et 80 m à 2 860 m d'altitude (Pic du Midi). Les grandes variations du mouvement propre ont diminué l'avantage des grandes vitesses de comptage; nous avons été également gênés par la résistance du verre des compteurs aux basses températures. Des effets barométriques de  $-10,6 \pm 0,2$  pour 100 et de  $-10,4 \pm 0,16$  pour 100 ont été trouvés sur 5 et 80 m ( $2 \cdot 10^7$  et  $3 \cdot 10^8$  coïncidences), pratiquement identiques. Sur 5 m, un effet de température de  $-1$  pour 1000 par degré centigrade résulte d'un pur effet géométrique de densité prévu par nous antérieurement. Cet effet de densité est susceptible d'avoir une influence considérable aux très grandes envergures ( $> 100$  m) et aux très grandes densités observées avec la chambre d'ionisation. Après une discussion détaillée, il subsiste entre les deux enregistrements de grandes gerbes de l'air, une corrélation sur les valeurs journalières d'hiver de 0,35 qui pourrait être attribuée à un effet physique encore inconnu dont l'amplitude moyenne serait de l'ordre de 0,7 pour 100 par jour. Un effet supérieur à 1 pour 100 par jour en hiver, c'est-à-dire au  $1/6^e$  de l'effet barométrique paraît exclus. L'absorption des gerbes d'Auger paraît diminuer entre 3 000 m et le niveau de la mer témoignant d'une redistribution dans les divers rayonnements au détriment des nucléons et des électrons, à l'avantage des mésons  $\mu$ .

**Introduction.** — Dans cet article, nous nous proposons d'analyser le dispositif expérimental et les corrections de toute nature. Nous donnerons ensuite les résultats sur l'effet barométrique et l'effet de température sans démonstration ni analyse statistique qui sont développés dans un article à paraître dans le *Journal of Terrestrial and Atmospheric Physics* (G. B.). Enfin, nous analyserons les résultats du point de vue du parcours d'absorption des gerbes d'Auger dans l'atmosphère.

**1. Dispositif expérimental.** — Depuis l'été 1948, nous observons au Pic du Midi (2 860 m) les gerbes d'Auger avec des compteurs sur 5 et 80 m de base. Les compteurs sont du type Maze à cathode externe argon et méthylal, ils ont  $125 \text{ cm}^2$  de surface et sont groupés par bancs de 5 et 14 compteurs écartés les uns des autres de deux fois leur diamètre [1]. Les anodes des compteurs groupés par 5 sont en parallèle. Les compteurs par 14 sont alimentés par des résistances individuelles de  $7,5 \Omega$  et connectés à la grille de la première lampe par des capacités individuelles de 20 pF. Tous les bancs sont fixés au plafond du laboratoire ( $12 \text{ g/cm}^2$  de bois) et sont insensibles aux gerbes secondaires issues de ce plafond. Les compteurs sont blindés par 3 mm de plomb (contre la radioactivité hivernale), ce qui accroît les coïncidences d'un facteur 50 pour 100, aussi bien sur grande que sur petite base. Ceci signifie que la surface des compteurs est accrue de 35 pour 100 par le plomb (en prenant  $\gamma = 1,37$ ). Le nombre des photons (de  $\sim 50 \text{ MeV}$ ) semble ainsi plus élevé pour les faibles densités, car avec des surfaces de  $100 \text{ cm}^2$  nous avons un effet de 30 pour 100 seulement au niveau de la mer [2].

Les bancs ont ainsi des surfaces de  $125 \text{ cm}^2 \times (14 \text{ ou } 5) = 1750 \text{ cm}^2$  et  $675 \text{ cm}^2$ . Les gerbes enregistrées ont donc en moyenne 4 et 12 trajectoires électroniques au mètre carré ( $0,74$  électron  $+0,26$  photon matérialisé par banc) [3].

Deux bancs de 14 compteurs éloignés de 4,75 m sont mis en coïncidence double par un sélecteur Maze de pouvoir séparateur  $5 \cdot 10^{-7} \text{ s}$ ; les alimentations sont d'un type conventionnel. Ceci correspond à un nombre d'électrons moyen de 200 environ sur une surface de  $30 \text{ m}^2$  et à une énergie *actuelle* de  $10^{10} \text{ eV}$  pour les électrons et d'environ  $5 \cdot 10^{10} \text{ eV}$  au total (photons et mésons compris) en supposant que la gerbe moyenne soit concentrée sur les  $30 \text{ m}^2$  du laboratoire.

Ces coïncidences doubles entrent elles-mêmes en coïncidence avec un banc de 14 compteurs situé à 80 m dans un sélecteur de pouvoir séparateur  $5 \cdot 10^{-6} \text{ s}$ .

Les deux bancs de cinq compteurs (même distance) sont mis en coïncidence par un sélecteur identique, mais les filaments des tubes sont sur accumulateur et la haute tension des compteurs est fournie par piles. Les deux appareils sont entièrement indépendants. Le *même* groupe éloigné entre ensuite en coïncidences triples avec les doubles. De plus, en retardant les chocs d'un banc, on enregistre les coïncidences fortuites entre les deux bancs de cinq compteurs.

Dans l'ordre, les grandeurs enregistrées seront pour simplicité appelées  $D_{14}$ ,  $T_{14}$ ,  $D_5$ ,  $T_5$  et  $F_5$ . Le tableau I résume les résultats importants relatifs à ces grandeurs.

Les erreurs sur les fréquences sont déduites de la cohérence interne des séries de mesures car les



TABLEAU I.

Nom.	Nature des coïncidences.	Distance (m).	Densité moyenne électrons (m <sup>2</sup> ).	Energie actuelle probable moyenne (eV).	Fréquence (mn <sup>-1</sup> ).	Nombre jours observés.	Nombre total coïncidences.
$D_{14} \dots$	Doubles entre deux bancs de 14 compteurs	4,74	4	$5 \cdot 10^{10}$	$25,32 \pm 0,05$	502	$16 \cdot 10^6$
$T_{14} \dots$	Triples entre trois bancs de 14 compteurs	80	4	$5 \cdot 10^{12}$	$2,91 \pm 0,02$	652	$2,4 \cdot 10^6$
$D_5 \dots$	Doubles entre deux bancs de 5 compteurs	4,74	12	$1,5 \cdot 10^{11}$	$5,91 \pm 0,02$	458	$4 \cdot 10^6$
$T_5 \dots$	Triples entre deux bancs de 5 et un banc de 14 compteurs	80	10	$10^{13}$	$1,08 \pm 0,01$	370	$0,5 \cdot 10^6$
$F_5 \dots$	Fortuites entre deux bancs de 5 compteurs	—	—	—	0,2 à 0,5	—	—

fluctuations des moyennes journalières d'une série à l'autre sont supérieures aux fluctuations statistiques. Les fréquences des doubles entre 5 compteurs doivent être accrues de 2,8 pour 100 et entre 14 de 0,5 pour 100 par suite des temps morts. L'énergie actuelle est calculée en supposant à la gerbe l'envergure moyenne égale à celle du système de compteurs [4]. Pour les coïncidences doubles, les fortuites ont été déduites. Les fortuites varient de 0,2 à 0,5 mn<sup>-1</sup> suivant l'âge des compteurs, leur sensibilité à la température et surtout la radioactivité hivernale. Sur les coïncidences triples, les fortuites ont varié suivant les pouvoirs séparateurs sans dépasser 0,05 mn<sup>-1</sup> pour  $T_{14}$ , soit 1,7 pour 100 des triples; nous n'en avons pas tenu compte.

**Contrôles réguliers.** — Une camera photographie toutes les heures les numérateurs actionnés par ces cinq dispositifs, ainsi que les grandeurs suivantes : débits plaque des sélecteurs, haute tension des deux groupes de compteurs, mouvement propre d'un groupe de compteurs quelconques.

Les contrôles journaliers comportent :

a. 15 à 20 mn d'immobilisation d'un banc de compteurs afin d'enregistrer les parasites locaux ou atmosphériques. Les parasites enregistrés sur 250 h de contrôle atteignent à peine une dizaine, grâce au pouvoir séparateur élevé des sélecteurs; nous les négligeons;

b. En outre, on contrôle sur le 1<sup>er</sup> sélecteur les marges de réglage de deux ou trois tubes par jour;

c. On vérifie le centrage correct des impulsions des deux bancs l'un par rapport à l'autre;

d. On enregistre pendant 30 à 40 mn les coïncidences fortuites entre deux bancs de 14 compteurs;

e. Enfin, les mouvements propres de tous les bancs sont observés matin et soir à l'intégrateur et à l'oscilloscope.

Les contrôles mensuels comportent : l'étude individuelle des 52 compteurs en service et la vérification des marges de fonctionnement de tous les

tubes à polarisation réglable. Ces tubes (en majorité des 6 J 7, outre cinq EF 51 et cinq T 100 G) se sont d'ailleurs montrés d'une stabilité presque parfaite. Les compteurs ont dû être changés ou repompés tous les ans.

**2. Discussion expérimentale.** — **A. Pouvoir séparateur.** — Le pouvoir séparateur élevé élimine les parasites et abaisse les coïncidences fortuites. Mais il a l'inconvénient de rendre les coïncidences plus sensibles aux caractéristiques individuelles des compteurs et aux constantes de temps des circuits de préamplification. Ces circuits et surtout les résistances d'anode doivent être stables, ce qui est aisé à contrôler. Pour les compteurs, ils doivent fonctionner assez haut au-dessus du seuil (150 V); on doit veiller à la présence (exceptionnelle) de compteurs en verre plus résistant qu'il faut survolter; surtout les compteurs doivent avoir le même âge sur un même banc. Les compteurs à mouvement propre élevé, s'usant plus vite, doivent être éliminés à temps. Le seuil s'élève, en moyenne, de 3 à 5 V par mois pour un mouvement propre de 12 à 15 par seconde.

**B. Variations du mouvement propre.** — Dans le premier hiver 1949-1950, les observations ont dû être rejetées : la radioactivité hivernale sous une épaisse couche de neige pouvait tripler le mouvement propre (1). Les chemises de plomb de 3 mm ont ensuite éliminé la plupart des rayons  $\gamma$  radioactifs et les variations du mouvement propre n'ont plus dépassé 30 pour 100. Les constantes de temps des circuits d'amplification ont dû être réduites pour éliminer les pertes aux fréquences élevées. Nous avons contrôlé, au moyen d'une source, qu'en doublant le mouvement propre les triples croissent de  $+2 \pm 2$  pour 100 (pertes nulles) et l'accroisse-

(1) Le mouvement propre peut également s'accroître momentanément pour des compteurs trop neufs soumis au froid; les compteurs sont à l'abri de la lumière.

ment des doubles correspond à celui des fortuites. Sur les groupes de 5, les coïncidences doubles augmentent de  $0,5 \pm 0,2 \text{ mn}^{-1}$  quand les fortuites augmentent de  $0,68 \pm 0,1$ . Sur les groupes de 14, le doublement du mouvement propre d'un banc augmente les doubles de  $1,4 \text{ mn}^{-1} \pm 0,2$ , alors que les fortuites normales sont de  $1,6 \text{ mn}^{-1}$ .

Tous les circuits ont des constantes de temps très inférieures au temps mort des compteurs. Le circuit de charge des compteurs sur les groupes de 14 a une constante de temps de  $2 \cdot 10^{-4} \text{ s}$  égale au temps mort. D'après le calcul, un accroissement de 20 pour 100 du mouvement propre provoquerait une perte inférieure à 1 pour 1000 sur  $D_{14}$  et  $T_{14}$  (fluctuations statistiques journalières : 5 pour 1000 sur  $D_{14}$  et 17 pour 1000 sur  $T_{14}$ ). Sur les groupes de 5, les fluctuations de 30 pour 100 sur le mouvement propre auraient un effet plus élevé, de 1 pour 100 (fluctuations statistiques journalières : 1 pour 100 sur  $D_5$  et 2,5 pour 100 sur  $T_5$ ).

Enfin, on peut contrôler *directement* l'équation

$$\text{Doubles vrais} = \text{Doubles enregistrées} - \text{Fortuites.} \quad (1)$$

On a observé durant l'hiver 1950-1951 que l'augmentation des fortuites entre bancs de 14 compteurs était 3,5 fois celle des fortuites entre bancs de 5. En outre, la même augmentation était de  $0,022 \text{ mn}^{-1}$  pour un accroissement du mouvement propre de  $1 \text{ s}^{-1}$ .

En tenant compte des variations de la pression  $H$  et des variations du mouvement propre  $I$ , on peut établir les équations de régression

$$\begin{aligned} \Delta D_5 &= \alpha \Delta H + \varphi \Delta F_5, \\ \Delta D_{14} &= \alpha \Delta H + \varphi' \Delta F_5, \\ \Delta D_{14} &= \alpha \Delta H + i \Delta I. \end{aligned} \quad (2)$$

Sur 7 périodes,  $\varphi$  a la valeur moyenne  $0,8 \pm 0,1$  au lieu de 1 prévue.

Sur 8 périodes,  $\varphi'$  a la valeur moyenne  $3,2 \pm 0,2$  au lieu de 3,5 prévue.

Sur 4 périodes,  $i$  a la valeur moyenne  $0,018 \pm 0,004$  au lieu de 0,022 prévue.

Tous ces résultats confirment la validité de l'équation (1). Pour  $D_5$ , il suffit de retrancher la valeur moyenne de  $F_5$  pour avoir les coïncidences vraies. Pour  $D_{14}$ , on retranche la valeur moyenne des fortuites  $F_{14}$  pour la période, augmentée de la variation particulière à la journée, égale à  $\varphi' \Delta F_5$  ou à  $i \Delta I$ . Une erreur de 20 pour 100 sur le niveau des fortuites constituant 6 et 4 pour 100 des coïncidences doubles, introduirait une erreur maximale relative de 1 pour 100 sur l'effet barométrique en supposant que ces fortuites présentent un effet barométrique nul, ce qui n'est pas vrai.

*C. Effet de température sur les compteurs.* — Il a été vérifié maintes fois et aussi par nous-même que le seuil ni le fonctionnement des compteurs Maze à méthylal ne sont altérés jusqu'à  $-20^\circ$ . En

revanche, la résistance interne du verre par où doivent s'écouler les charges positives fait que le potentiel de la coque interne est toujours supérieur à zéro. Nous avons étudié cet effet très simplement. Nous mesurons à l'oscilloscope l'amplitude des impulsions pour 100 V au-dessus du seuil et un mouvement propre  $I$ , puis nous portons le survoltage à 150 V et nous ramenons avec une source radioactive (mouvement propre  $I'$ ) la taille des impulsions pour 150 V à la valeur qu'elles avaient pour 100 V et un mouvement propre  $I$ . Dans les deux cas, le survoltage effectif par rapport à la couche interne était le même et égal à  $\Delta V$ . Les chutes de potentiel dans le verre  $v$  et  $v'$  étaient donc dans le rapport des mouvements propres  $I$  et  $I'$ ,  $R$  étant la résistance du verre. Dans les deux cas, chaque décharge développait la même quantité d'électricité  $q$ . En supposant la loi d'Ohm valable

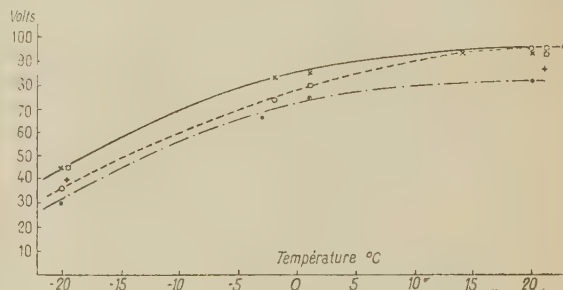


Fig. 1. — Variation du survoltage effectif de l'anode en fonction de la température (mouvement propre,  $20 \text{ s}^{-1}$ ) pour cinq compteurs  $\times$ ,  $o$ ,  $.$ ,  $+$ ,  $\square$ .

pour le verre pour des intensités de  $10^{-10} \text{ A/cm}^2$ ,

$$v = RIq, \quad v' = RI'q, \quad v + \Delta V = 100, \quad v' + \Delta V = 150,$$

d'où

$$v' - v = Rq(I' - I) = 50.$$

D'où  $v = 50 \frac{I' - I}{I}$  = la chute de tension dans le verre.

Aux basses températures  $t'$ , où la résistance est très élevée, il est plus précis de garder le même mouvement propre et d'accroître le survoltage  $\varphi$  jusqu'à ce que l'amplitude des chocs atteigne la même valeur qu'à la température initiale  $t$

$$v + \Delta V = 100, \quad v' + \Delta V = \varphi,$$

$v$  à la température  $t$  étant connu, on a  $v' = v + \varphi - 100$

$\Delta V$  étant, comme  $v$ , proportionnel à la charge développée  $q$ , il en résulte que la chute de tension dans le verre est proportionnelle au survoltage total nominal (si ni  $R$  ni  $I$  ne changent). Si pour un survoltage  $\varphi$ , on a une chute de tension  $v'$  dans le verre, pour un survoltage de 100 V à la température  $t'$ , on aura une chute

$$v' = \frac{100}{\varphi} (\varphi + v - 100).$$



Le survoltage effectif dynamique est  $100 - v$  si le compteur travaille à 100 V nominalement. On peut donc établir la variation de ce survoltage à diverses températures. La figure 1 donne les résultats obtenus pour cinq compteurs neufs ou usés. D'après ces résultats, la résistance du verre croîtrait d'un facteur variable 12 à 60 de  $+20^\circ$  à  $-20^\circ$ .

Au-dessus de  $+10^\circ$ , la variation serait  $\sim 0,4$  V/degré; entre 0 et  $10^\circ$ ,  $\sim 1$  V/degré; entre  $-5$  et  $+5^\circ$ ,  $1,2$  V/degré; entre  $-15$  et  $-5^\circ$ , environ 2 V/degré. Les corrections ne sont sensibles que pour le groupe situé à 80 m dont la température suivait parfois d'assez près la température extérieure.

### 3. Effets barométriques et de température.

— Le lecteur trouvera le détail des résultats dans l'article simultané publié dans le *Journal of Atmospheric and Terrestrial Physics*.

En prenant les valeurs journalières des grandes gerbes et de la pression et en groupant les journées en séries portant en moyenne sur un mois, durant lesquelles les appareils n'ont subi ni modification ni incident, on trouve pour les coïncidences doubles sur 5 m en hiver un effet barométrique moyen

$$\alpha_{\text{brut}}^{5\text{m}} = -10,6 \text{ pour } 100 \pm 0,08 \text{ par cm de mercure.}$$

(erreur médiane sur 17 séries de mesures).

En été, les fortuites n'ont pas été déduites. Si leur coefficient barométrique est voisin de celui des grandes gerbes, on trouve sur 9 séries

$$\alpha_{\text{brut}}^{5\text{m}} = -9,9 \pm 0,2 \text{ pour } 100.$$

S'il est nul on trouve  $-10,3 \pm 0,2$  pour 100. Les valeurs d'hiver sont beaucoup plus précises, parce que les variations de pression sont beaucoup plus considérables. Pour les coïncidences triples (80 m), on trouve sur 35 séries de mesures,

$$\alpha_{\text{brut}}^{80\text{m}} = -9,5 \pm 0,17 \text{ pour } 100 \text{ par cm Hg.}$$

Il est définitivement établi que le coefficient barométrique n'est pas anormal aux grandes envergures; nos résultats actuels précisent sans les contredire nos résultats préliminaires de 1948 [6] et ceux de Millar [7].

*Effet de température.* — Dans une publication antérieure [6], nous avions prévu, un effet de température, *purement géométrique*, aux petites distances dû à la contraction des gerbes avec la densité de l'air, d'environ  $-1$  pour 1000 par degré.

En calculant les coefficients de régression de l'équation

$$\Delta D = \alpha \Delta H + \theta \Delta T \quad (T, \text{température extérieure}), \quad (3)$$

on trouve un effet de température sur les coïncidences doubles de

$$\theta^{5\text{m}} = -0,74 \pm 0,12 \text{ pour } 1000 \text{ par degré centigrade en hiver}$$

et

$$\theta^{80\text{m}} = -2 \pm 0,12 \text{ pour } 1000 \text{ en été.}$$

La différence entre l'hiver et l'été pouvant provenir pour une faible partie d'un léger effet instrumental lorsque la température du laboratoire descend au-dessous de  $15^\circ$ .

Le coefficient barométrique déduit de l'équation (3), compte tenu de l'effet de température, devient

$$\alpha = -10,21 \pm 0,1 \text{ pour } 100 \text{ par cm Hg.}$$

Ce coefficient est plus petit que  $\alpha_{\text{brut}}$ , parce que l'effet barométrique brut comprend une partie de l'effet de température à cause de la corrélation positive entre H et T. La température n'agit que par la densité de l'air, or la pression barométrique fait varier également cette densité à raison de 1,85 pour 100 par centimètre de mercure, la variation relative des coïncidences étant de 0,2 fois celle de la densité, le coefficient barométrique apparent est la somme d'un effet barométrique réel  $\alpha_{\text{vrai}}$  et d'un effet de densité

$$\alpha \Delta H = \alpha_{\text{vrai}} \Delta H + 0,2 \times 0,0185 \Delta H$$

ou

$$\alpha_{\text{vrai}}^{5\text{m}} = -0,1021 - 0,0037$$

$$= -10,58 \pm 0,2 \text{ pour } 100 \text{ par cm Hg.}$$

Les erreurs indiquées sont les erreurs médianes résultant de la cohérence interne de l'ensemble des séries de mesures; elles sont supérieures de 20 pour 100 seulement aux erreurs calculées pour chaque série de mesures. Les dispersions résiduelles, toutes corrections faites, sont en moyenne 2,1 pour les coïncidences entre bancs de 14 compteurs et 1,2 pour les coïncidences entre bancs de 5 compteurs.

On peut rechercher l'effet de température sur les triples de la même façon, on trouve

$$\theta = +1,95 \pm 0,18 \text{ pour } 1000$$

pour les périodes froides ( $-15^\circ$ ,  $-5^\circ$ );

$$\theta = +1,65 \pm 0,45 \text{ pour } 1000$$

pour les périodes tempérées ( $-5^\circ$ ,  $+5^\circ$ ) et

$$\theta = 1 \pm 0,3 \text{ pour } 1000$$

pour les périodes chaudes ( $> 0^\circ$ ).

D'après ce que nous avons vu plus haut, le groupe éloigné à la température extérieure doit fonctionner à des tensions effectives, variant respectivement de 2, 1,2 et 1 V par degré dans ces trois types de périodes. Les coïncidences doubles varient de 0,7 pour 1000 par volt d'après nos analyses. L'effet sur les triples des variations sur le seul banc éloigné est la moitié de ce chiffre, soit 0,4 pour 1000 par volt. Au total pour les trois types de périodes les

effets instrumentaux de température seraient :

$$+0,8, +0,5 \text{ et } +0,4 \text{ pour } 1000 \text{ par degré.}$$

En conséquence, la moitié de l'effet observé est instrumental. Il est donc possible qu'il existe un effet physique de l'ordre de  $+0,5$  pour 1000 de la même nature géométrique que pour les doubles, mais inverse. Les données que nous avons pu obtenir sur les exposants  $\gamma$  (de densité) et  $\beta$  (de décohérence) nous permettent seulement de prévoir que cet effet géométrique serait de

$$0 \pm 0,8 \text{ pour } 1000 \text{ par degré centigrade}$$

et il est impossible de décider si l'effet trouvé est en partie physique. Compte tenu de l'effet de température (instrumental et physique), le coefficient barométrique devient.

$$\alpha_{80m} = -10,4 \pm 0,16 \text{ pour } 100 \text{ par cm Hg.}$$

(35 séries de mesures). Il est impossible de faire une correction de densité barométrique dont le sens est inconnu. L'effet barométrique trouvé est pratiquement identique à l'effet sur 5 m.

*Conséquences de l'effet géométrique de densité.* — En premier lieu, aux grandes distances, la décohérence augmente beaucoup [10]. L'exposant  $\beta$  de décohérence peut croître plus vite que  $2\gamma$  (exposant de surface). L'effet de densité étant gouverné par l'exposant

$$2\gamma - 2 - \beta$$

peut devenir négatif aux grandes distances. Il pourrait apparaître ainsi un fort effet de température positif aux très grandes distances ( $\sim 200$  m) qui entraînerait une onde diurne prononcée en phase avec la température.

En deuxième lieu, considérons une chambre d'ionisation faiblement protégée. Les grosses bursts sont dues aux gerbes de l'air et spécialement à leurs condensations centrales dont la loi de répartition en densité est abrupte  $\gamma = 1,7$ . Ces condensations s'étendant sur des surfaces de l'ordre du mètre carré, la décohérence latérale peut être faible et  $\beta$  très petit. A la limite l'exposant

$$2\gamma - 2 - \beta = 1,4.$$

La variation des enregistrements serait proportionnelle à 1,4 fois la variation de la densité de l'air. D'où un effet de température de  $-5$  pour 1000 très considérable. La densité de l'air variant aussi avec la pression, le coefficient barométrique apparent serait inférieur de 2,5 pour 100 à sa valeur vraie; quant au coefficient barométrique brut, sans tenir compte de l'effet de température, il dépendrait beaucoup de la corrélation pression, température qui peut être élevée et pourrait être ainsi ramené à une valeur apparemment normale.

L'effet géométrique de densité pourrait entraîner

ainsi un effet de température positif et une onde diurne positive aux grandes envergures, tandis que les grosses bursts dans les chambres d'ionisation peu protégées pourraient être soumises à un très fort effet de température sans qu'il soit nécessaire de faire intervenir des particules primaires instables [11].

**4. Corrélation résiduelle.** — Si l'on corrige les deux enregistrements indépendants  $D_{14}$  et  $D_5$  de l'effet barométrique brut, il subsiste entre eux une corrélation moyenne journalière de  $+0,5$  en moyenne (sur 8 périodes d'hiver examinées, toutes les corrélations sont positives et supérieures à 0,25).

La correction de l'effet de température n'abaisse la corrélation que de 0,02, ce qui est négligeable. En revanche, lorsque la pression a beaucoup varié, la substitution d'une équation de régression logarithmique correcte (au lieu de l'équation linéaire)

$$\Delta L_n D = \alpha_{\text{brut}} \Delta H.$$

abaisse la dispersion et la corrélation résiduelle de 0,1. Quand la pression n'a pas varié de plus de 15 mm, cette correction est négligeable.

En outre, 2,5 coïncidences  $\text{mn}^{-1}$  sont communes à  $D_5$  et à  $D_{14}$ , d'où une corrélation purement statistique de  $+0,2$  dans le cas limite où n'existeraient que des fluctuations statistiques.

En fait, cette corrélation est plus forte que 0,2 et les dispersions après correction sont supérieures à 1. Le calcul montre qu'un effet physique d'amplitude moyenne 0,7 pour 100 par jour agissant sur les deux enregistrements entraînerait une dispersion résiduelle de 1,7 pour  $D_{14}$  (2,1 observé), de 1,2 pour  $D_5$  (1,2 observé) et une corrélation de 0,5 entre  $D_5$  et  $D_{14}$  qui tomberait à  $+0,35$  en tenant compte des coïncidences communes entre  $D_5$  et  $D_{14}$ .

Un tel effet de 0,7 pour 100 en moyenne par jour paraît trop considérable pour être expliqué par des fluctuations instrumentales, les deux appareils étant indépendants, encore moins par des dérives de pendule. Un effet physique inconnu, autre que celui de la température et de la pression, doit sans doute être invoqué pour expliquer cette corrélation résiduelle et certains détails tels que les variations apparentes de l'effet barométrique entre l'hiver et l'été. Cet effet serait environ 8 fois plus faible sur les valeurs journalières que l'effet barométrique.

#### 5. Parcours d'absorption des gerbes d'Auger.

— La détermination précise de l'effet barométrique après élimination de l'effet de densité permet de calculer le parcours d'absorption des gerbes d'Auger dans l'air. Le coefficient de  $-10,6 \pm 0,2$  pour 100 par centimètre de mercure correspond à un parcours brut de  $128 \text{ g/cm}^2$  d'air.

Nous pouvons comparer avec l'absorption entre le Pic du Midi et Bagnères-de-Bigorre. Deux groupes



de 14 compteurs nus à 4,74 m au Pic du Midi (540 mm Hg) donnent  $16,5 \pm 0,03$  coïncidences doubles à la minute dont  $1,7 \text{ mn}^{-1}$  fortuites, soit  $14,8 \pm 0,2$  coïncidences vraies. Deux groupes de 10 compteurs à 5,20 m à Bagnères (712 mm Hg) donnent  $2,30$  coïncidences  $\text{mn}^{-1}$  dont  $0,65$  fortuites, d'où  $1,65 \text{ mn}^{-1}$  coïncidences vraies.

Ramenés à 10 compteurs, les deux bancs au Pic donneraient :

$$14,8 \times \left(\frac{10}{14}\right)^{1,35} = 9,1 \text{ mn}^{-1}.$$

La distance portée à 5,20 m réduirait le nombre des coïncidences à

$$9,4 \times \left(\frac{5,2}{4,7}\right)^{-0,4} = 9,04 \text{ mn}^{-1}.$$

Le rapport  $\frac{\text{Bagnères}}{\text{Pic}}$  vaut donc

$$5,5 \pm 0,15.$$

La densité moyenne de l'air à Bagnères est 1,24 fois celle du Pic. Ceci introduit une correction de 5,5 pour 100 et fait monter le rapport  $\frac{\text{Pic}}{\text{Bagnères}}$  à 5,78 d'où une absorption moyenne en  $133 \pm 2 \text{ g/cm}^2$ .

Cocconi et Cocconi [8] ont trouvé un rapport  $8,8 \pm 0,15$  entre les niveaux 740 et 515 mm Hg. La correction de densité amène ce rapport à la valeur  $9,4 \pm 0,15$  et à une absorption moyenne en  $136 \pm 1 \text{ g/cm}^2$  légèrement inférieure à nos observations.

On sait que le coefficient barométrique au niveau de la mer semble plus petit qu'au Pic et est de

l'ordre de — 9 pour 100 par centimètre de mercure. On doit sans doute attribuer cette absorption décroissante à une lente modification dans la répartition des particules de grande énergie au détriment des nucléons et des mésons  $\pi$  en faveur des mésons  $\mu$  rapides moins absorbables. La proportion des particules pénétrantes trouvée par Cocconi, Cocconi et Greisen [9] croît sensiblement entre 3260 et 260 m.

Il est difficile d'appliquer la correction de Grosz pour obtenir l'absorption des grandes gerbes verticales, faute d'une connaissance suffisante de la variation des gerbes de l'air dans la haute atmosphère. Des formules raisonnables conduisent à un

$$\Lambda_{\text{abs}} \sim 155 \text{ g/cm}^2 \pm 5$$

pour des gerbes de 4 électrons au mètre carré à 3000 m.

**6. Remerciements.** — Les appareils ont été câblés, dépannés et surveillés durant de longs mois d'hiver par M<sup>lle</sup> G. Rochet, ingénieur I. E. G. et M. Guy Carmouze, collaborateur technique, sans le dévouement constant de qui ce travail n'aurait pu être mené à bien. Le directeur, M. Rösch et le secrétaire de l'Observatoire, M. Taule, ont fait tout ce qui était en leur pouvoir pour nous aider et ont été soutenus par la bonne volonté constante de tout le personnel de l'Observatoire; tous ont droit à notre reconnaissance. Nous remercions également la Société Lumière qui nous a livré gratuitement 600 m de film pour nos enregistrements.

Manuscrit reçu le 30 octobre 1952.

#### BIBLIOGRAPHIE.

- [1] DAUDIN. — *J. Physique Rad.*, 1949, **10**, 65.
- [2] DAUDIN. — Thèses, Paris, 1942, p. 50.
- [3] AUGER et DAUDIN. — *C. R. Acad. Sc.*, 1941, **212**, 897.
- [3] AUGER P. et DAUDIN J. — *J. Physique Rad.*, 1945, **6**, 841.
- [3] COCCONI, LOVERDO et TONGIORGI. — *Phys. Rev.*, 1946, **70**, 841.
- [4] FRETTER et ISE. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 933.
- [5] MAZE. — *J. Physique Rad.*, 1946, **7**, 164.
- [6] DAUDIN A. et DAUDIN J. — *J. Physique Rad.*, 1949, **10**, 394.
- [7] MILLAR D. — *Proc. Irish. Roy. Acad.*, 1951, **54**, 115.
- [8] COCCONI et COCCONI-TONGIORGI. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 1058.
- [9] COCCONI et COCCONI-TONGIORGI, GREISEN. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 1063.
- [10] SKOBELTZYN, ZATZEPIN, MITLER. — *Phys. Rev.*, 1947, **71**, 315.
- [11] KAMEDA et WADA. — *Prog. Théor. Phys. Jap.*, 1952, **7**, 586.

## PROPRIÉTÉS OPTIQUES ET PHOTOÉLECTRIQUES DES COUCHES MICROCRISTALLINES DE SULFURE DE PLOMB DANS LE VISIBLE ET L'INFRAROUGE

Par PIERRE VERNIER,

Laboratoire de Physique Astronomique  
de l'Observatoire de Paris.

**Sommaire.** — Après un rappel des faits expérimentaux, on expose les particularités des méthodes de fabrication et de mesure des couches.

Des interférences ont été mises en évidence. Le calcul permet de déduire le coefficient d'absorption du pourcentage de transmission.

Une certaine corrélation est trouvée entre le spectre d'absorption et le spectre de photoconductivité.

**Introduction.** — La photoconductivité de certaines couches minces de sulfure de plomb permet de fabriquer des récepteurs infrarouges sensibles jusqu'à  $2,5\text{--}3\ \mu$  et utilisables à température ordinaire. Son étude a conduit à rechercher une corrélation avec l'absorption de la substance dans le domaine spectral.

De nombreux travaux ont été effectués sur de la galène et sur des monocristaux synthétiques.

Avery (1951) mesure la réflexion d'une lumière polarisée rectiligne et en déduit le coefficient d'absorption et l'indice de la galène polie. Il trouve une chute rapide de l'absorption quand la longueur d'onde croît de  $0,4$  à  $2\ \mu$  et un indice constant, à  $2$  pour  $100$  près égal à  $4$ , de  $0,8$  à  $2,5\ \mu$ .

Paul, D. A. Jones et R. V. Jones (1951), puis Gibson (1952), atteignent la constante d'absorption  $k$  en mesurant la transparence de cristaux amincis par polissage. Leurs mesures ne commencent qu'à  $2,5\ \mu$ , ils trouvent une chute d'absorption jusqu'à  $4\ \mu$ , où  $k$  est minimum.

Tous ces résultats, indiqués en pointillés sur la figure 2, divergent notablement, ce que les auteurs expliquent par des différences de pureté des cristaux utilisés.

Aucun monocristal n'est photoconducteur. Pour trouver une corrélation entre les résultats d'absorption et de sensibilité, Gibson utilise les points sensibles des cristaux par le dispositif de la photodiode et trouve que la chute d'absorption, de  $2,5$  à  $4\ \mu$ , correspond bien à la chute de sensibilité.

Le mécanisme de la photodiode peut être, cependant, assez différent de celui de la photoconductivité des couches utilisées comme récepteurs, où les barrières intercrystallines peuvent jouer un grand rôle. Il importe donc de mesurer l'absorption de couches microcristallines.

Gibson (1950) mesure la transparence de couches obtenues par dépôt chimique. Il en déduit que  $k$  décroît entre  $0,4$  et  $0,8\ \mu$  et conserve une valeur assez

élevée (supérieure à  $5 \cdot 10^3\ \text{cm}^{-1}$ ) entre  $0,8$  et  $6\ \mu$ . Il ne trouve aucune chute remarquable de l'absorption en corrélation avec la chute de sensibilité à  $3\ \mu$  des récepteurs. Il ne trouve pas les interférences caractéristiques des couches de microcristaux du système cubique.

Depuis 1949, à l'Observatoire de Paris, des travaux ont été entrepris par M. Davier et M<sup>lle</sup> Delbouis. La mise au point des méthodes de mesure qu'ils ont faite nous a été grandement utile.

**1. Fabrication des couches.** — Nous employons les différents modes de fabrication des récepteurs.

**PROCÉDÉS PHYSIQUES.** — *Distillation.* — Nous distillons sous vide, vers  $600^\circ$ , quelques milligrammes de sulfure de plomb très pur, de façon à obtenir une couche homogène. Ce procédé, avec des traitements appropriés à l'oxygène et au gaz sulfureux, donne des cellules fermées qui constituent les meilleurs récepteurs.

*Evaporation.* — Nous évaporons, également, sous un vide assez médiocre, vers  $800^\circ$ , de la poudre de sulfure de plomb d'un creuset de tungstène sur le support.

**PROCÉDÉS CHIMIQUES** (1). — Par action de la thiourée sur le plombite de sodium, on obtient des dépôts de sulfure de plomb, très intéressants pour leurs propriétés photoélectriques. Pour obtenir des couches plus épaisses, on peut rassembler par distillation sous vide, vers  $400\text{--}600^\circ$ , une couche de grande surface obtenue par ce procédé.

**2. Support.** — Nous employons comme support, des plaques de saphir (2) transparentes dans toute

(1) Procédés mis au point par le Docteur G. Sommer.

(2) Dues à l'obligeance des Télécommunications Research Establishment (G. B.).



la bande de longueurs d'onde étudiée ( $0,4-6 \mu$ ) et des cellules en verre Duran amincies par soufflage. Le verre Duran est transparent jusqu'à  $2,5 \mu$  et utilisable, sous des épaisseurs de quelques dizaines de microns, jusqu'à  $4,5 \mu$ .

**3. Mesure de la transmission.** — Une source convenablement choisie éclaire la fente d'entrée d'un monochromateur. Derrière la fente de sortie se trouve une cellule au tellure de plomb (\*) (utilisée pour la première fois en France dans une application spectroscopique). La couche à mesurer est placée entre la source et le monochromateur.

La cellule au tellure, refroidie à l'air liquide, est branchée sur l'entrée d'un amplificateur à bande étroite ( $0,5 \text{ Hz}$ ) qui élimine en grande partie le bruit de fond. Le rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$  ainsi obtenu,

pour les fentes et les sources utilisées, est supérieur à 5 000 dans toute la bande de longueur d'onde étudiée. Dans ces conditions, ce n'est jamais le bruit de fond qui limite la précision, même avec de fortes absorptions.

Ainsi la cellule au tellure représente un progrès très net en sensibilité, donc en précision et en pouvoir séparateur, par rapport aux thermopiles et bolomètres utilisés précédemment.

En fait, la précision est limitée par la lumière parasite. Les couches mesurées sont pratiquement opaques, sauf les plus minces, dans la bande des plus courtes longueurs d'ondes, et le coefficient de transmission (rapport du flux transmis au flux incident), dépasse  $0,4$  dans la bande des plus grandes.

Dans la bande de transition ou du fait de la forte absorption, la lumière transmise peut être mélangée d'un fort pourcentage de lumière parasite

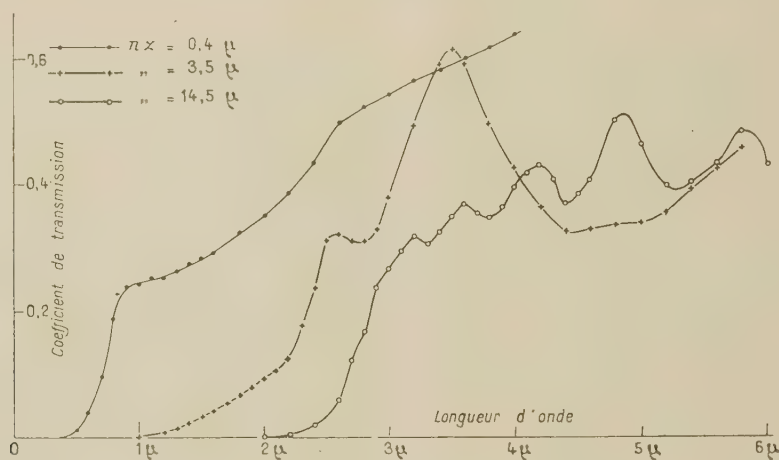


Fig. 1. — Transmission de couches chimiques de PbS de diverses épaisseurs.

provenant de la bande de forte transparence, nous n'avons pas d'erreur supérieure à 10 pour 100 sur le coefficient de transmission dès que celui-ci dépasse  $0,05$ . Dans la bande de transparence, le problème est moins critique et nous avons pu assurer une précision de 2 à 3 pour 100 de  $3$  à  $5 \mu$ .

La mesure du coefficient de transmission apparent dans la bande d'opacité constitue un excellent contrôle du taux de lumière parasite; elle permet, en outre, de vérifier que la couche ne comporte pas de trous (surface relative inférieure à  $0,1$  pour 100 dans tous les cas retenus).

#### 4. Interprétation du spectre de transmission.

— Soient  $R$ ,  $R'$ ,  $R''$  les facteurs de réflexion de Fresnel aux interfaces entre l'air et la couche, la couche et son support, le support et l'air.

Nous pouvons supposer l'indice  $n$  de la couche comme réel à 1 pour 100 près de  $1$  à  $6 \mu$ .

(\*) Fabriquées par le Service du Docteur Bartels que nous remercions, par ailleurs, pour toute l'aide apportée.

Le calcul du coefficient de transmission  $T$ , pour une longueur d'onde  $\lambda$ , où le coefficient d'absorption est  $k$ , pour une couche d'épaisseur  $z$  donne

$$T = (1 - R^2)(1 - R'^2)(1 - R''^2) \left( 1 + RR' e^{-kz} e^{-\frac{4\pi jnz}{\lambda}} \right)^2 e^{-kz}.$$

**5. Interférences.** — Elles proviennent du facteur

$$\left( 1 + RR' e^{-kz} e^{-\frac{4\pi jnz}{\lambda}} \right)^2.$$

Sur la figure 1, nous avons représenté les spectres de transmission de trois couches chimiques d'épaisseurs différentes. Les extrema qu'ils présentent sont caractéristiques d'un spectre cannelé. En calculant à partir d'une valeur de  $nz$ , déduite de la position d'un extremum, les positions des autres extrema, on obtient un très bon accord avec l'expérience. L'indice étant réel à 1 pour 100 près dans la bande où se produit le spectre cannelé, on peut considérer les réflexions aux interfaces comme vitreuses.

En outre, le contraste  $\rho$  entre les maxima et les minima diminue quand la longueur d'onde décroît, c'est-à-dire quand l'absorption augmente, ce qui est conforme au résultat du calcul.

$$\rho = \left( \frac{1 + RR' e^{-kz}}{1 - RR' e^{-kz}} \right)^2.$$

Les interférences ne sont pas décelables quand le coefficient de transmission  $T$  est inférieur à 0,2.

$\rho$  est cependant plus faible que ne permet de le prévoir la valeur élevée de l'indice  $n$  trouvée par Avery.

**6. Calcul du coefficient d'absorption.** — La mesure directe de l'épaisseur peut être effectuée sur certaines couches en formant, entre la couche grattée suivant un trait et un étalon de surface, les franges d'un coin d'air. Elle confirme grossièrement la valeur 4 de  $n$  trouvée par Avery.  $nz$  étant connu grâce au spectre cannelé, nous avons déduit  $z$  de  $nz$  en admettant  $n = 4$ , l'erreur n'atteint certainement pas 30 pour 100.

Nous ne pouvons calculer avec précision les coefficients de réflexion aux interfaces, il semble que des phénomènes anormaux se produisent. La mesure de l'incidence brewsterienne  $\varphi$  des couches a donné des valeurs trop faibles pour  $\tan \varphi$

$$\tan \varphi = 3 \pm 0,2 \text{ pour des couches chimiques,}$$

$$\tan \varphi = 2,1 \pm 0,2 \text{ pour des couches évaporées.}$$

Notons cependant que l'anomalie est plus forte pour les couches évaporées qui présentent une transmission moyenne  $T$  trop forte aux grandes longueurs d'ondes.

Nous avons donc éliminé  $R$ ,  $R'$ ,  $R''$  grâce au fait qu'ils sont indépendants de la longueur d'onde, comme le montrent les expériences de Avery et Gibson et l'accord de nos conclusions.

Pour les épaisseurs envisagées, dans la bande des plus grandes longueurs d'onde,  $e^{-kz}$  est pratiquement égal à 1, si bien que aux longueurs d'ondes de cette bande où  $e^{-\frac{4\pi n z}{\lambda}} = 0$

$$T = T_0 = (1 - R^2)(1 - R'^2)(1 - R''^2).$$

Pour nos couches évaporées, ce facteur est très supérieur à ce que l'on peut calculer en supposant  $n = 4$ . Pour les autres types de couches, aucune anomalie n'apparaît dans ce facteur.

Le calcul de  $k$  sera donc possible à toutes les longueurs d'ondes où

$$RR' e^{-kz} e^{-\frac{4\pi n z}{\lambda}} \text{ est petit devant } 1.$$

soit  $e^{-kz}$  petit (courtes longueurs d'ondes)

$$e^{-\frac{4\pi n z}{\lambda}} = 0, \quad \lambda = \frac{nz}{p + \frac{1}{4}} \quad (p \text{ entier}).$$

Sous ces conditions,

$$k = \frac{\log T_0 - \log T}{z \log e}.$$

La détermination de  $T_0$ , aisée pour les couches à support de saphir, est plus délicate pour des couches distillées en cellule pour lesquelles l'absorption du verre intervient à partir de 2,5  $\mu$ .

Pour chaque couche étudiée, nous obtenons ainsi le coefficient d'absorption  $k$  pour une série de valeurs de  $\lambda$ . Cette série est limitée, vers les courtes longueurs d'ondes, par l'influence de la lumière parasite sur la mesure de  $T$  et, vers les grandes longueurs d'ondes, par la trop grande importance relative de la réflexion par rapport à l'absorption ( $\log T$  trop voisin de  $\log T_0$ ).

**7. Photoconductivité.** — Nous plaçons la couche étudiée, munie d'électrodes convenables à la place de la cellule au tellurure. Pour étalonner les sources de lumière, nous utilisons une thermopile. La construction de l'amplificateur est telle que sa réponse est, quelle que soit la conductibilité  $\sigma$  de la couche, sensiblement proportionnelle à l'augmentation relative de  $\sigma$ ,  $\frac{\delta \sigma}{\sigma}$ . Nous mesurons donc la sensibilité de la couche par le rapport de la réponse de l'amplificateur à l'indication correspondante de la thermopile.

**8. Résultats.** — *a. SENSIBILITÉ.* — La sensibilité globale varie beaucoup d'une couche à l'autre.

Dans notre dispositif de mesure, le bruit de fond résiduel est sensiblement le même pour toutes les couches, nous pouvons donc rapporter la sensibilité globale au niveau moyen du bruit, pour une source donnée (filament de tungstène à 2700°), avec une fente fixe, à la longueur d'onde où la réponse de l'appareil de mesure est maximum (1,8  $\mu$  pour toutes les couches).

Les meilleures couches distillées et conservées sous vide ont un rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$  de l'ordre de  $10^5$ ; même sans traitement sensibilisant, il atteint souvent  $10^4$ . Mais de nombreux exemplaires n'ont aucune sensibilité décelable.

Nos couches chimiques, parfois insensibles aussi, n'atteignent jamais des rapports  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$  supérieurs à 1000.

Nous n'obtenons jamais, par notre procédé actuel, de couche évaporée appréciablement sensible.

Dans tous les cas, la répartition spectrale de la sensibilité présente le même aspect. Nous indiquons sur la figure 2 la sensibilité pour une couche particulièrement sensible. Deux chutes se situent dans les bandes 0,9-1,4 et 2,5-3  $\mu$ , le maximum, à 1,6  $\mu$ , n'existe pas toujours. Dans le cas des couches distillées conservées sous vide, l'ouverture de la cellule



diminue la sensibilité dans de très larges proportions, mais d'une façon à peu près uniforme sur tout le spectre.

**b. ABSORPTION.** — En raison de la très forte variation du coefficient d'absorption  $k$ , nous n'avons pu le calculer dans toute la bande  $0,4-4 \mu$  avec des couches d'une même épaisseur. Au delà de  $4 \mu$ ,  $k$  est trop faible pour que nous puissions le calculer d'après les couches étudiées, nous pouvons cependant affirmer qu'il est inférieur à  $500 \text{ cm}^{-1}$  de  $4$  à  $6 \mu$ .

Pour toutes les couches mesurées, quel que soit

résultats bien concordants. Les couches distillées donnent des résultats plus dispersés (cette dispersion pourrait n'être due qu'à l'erreur causée par le verre absorbant), et pas sensiblement différents de ceux des couches chimiques. Les couches évaporées, en très bon accord entre elles, se distinguent nettement des précédentes en ce que, à partir de  $0,6 \mu$ , l'absorption est nettement inférieure.

Nous ne retrouvons pas la queue de forte absorption trouvée par Gibson (1950) pour des couches et nos résultats ne sont pas essentiellement différents de ceux trouvés pour les monocristaux. Ils font, dans une certaine mesure, la jonction entre les résultats de Avery aux courtes longueurs d'onde et ceux de Gibson (1952) pour des monocristaux synthétiques. Il est possible que vers  $5-6 \mu$ ,  $k$  pour nos couches ait le même ordre de grandeur que pour les cristaux de grande dimension.

**c. CORRÉLATION ENTRE L'ABSORPTION ET LA SENSIBILITÉ.** — Pour les couches distillées et chimiques nous avons vu que la sensibilité globale varie dans de très larges proportions, alors que l'absorption varie peu. Nous n'avons pu mettre en évidence de lien entre la faible variation d'absorption et la forte variation de sensibilité.

Dans le groupe que constituent ces couches, les différences de sensibilité globale semblent être dues principalement à des différences de propriétés électriques et non photoélectriques. En effet, les couches sensibles ont des résistances de l'ordre de  $10^6 \Omega$ , les couches insensibles ont souvent des résistances beaucoup plus faibles (parfois inférieures à  $10^3 \Omega$ ). D'autre part, la quasi-destruction de la sensibilité par ouverture de la cellule contenant une couche distillée ne produit pas de modification décelable de l'absorption.

Le groupe des couches évaporées que nos procédés ne peuvent jusqu'ici rendre notablement sensibles présente à partir de  $0,6 \mu$  une absorption beaucoup plus faible que celle des couches distillées et chimiques qui sont souvent très sensibles.

La corrélation la plus significative nous semble résider entre les répartitions spectrales de la sensibilité et de l'absorption des couches distillées et chimiques : la chute de l'absorption est plus rapide dans les bandes  $0,9-1,4 \mu$  et surtout  $2,5-3 \mu$  où se situent également celle de sensibilité.

Manuscrit reçu le 15 novembre 1952.

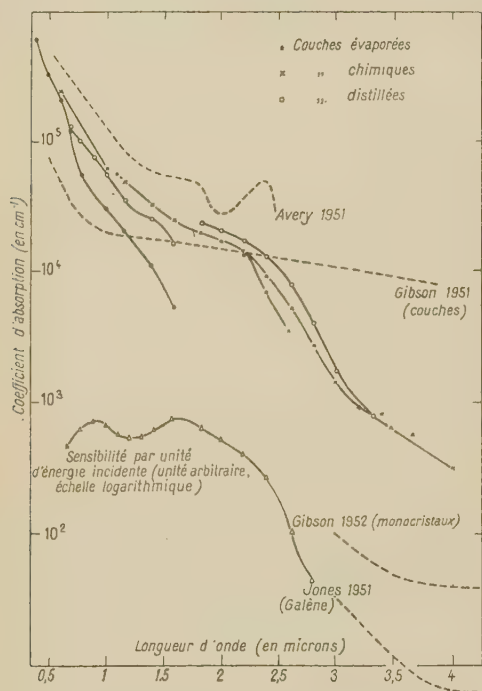


Fig. 2. — Absorption et sensibilité de couches de PbS. (En tiret les travaux antérieurs.)

le procédé de fabrication, l'élimination des interférences montre que  $k$  décroît très rapidement quand la longueur d'onde croît. Nous avons représenté sur la figure 2 les résultats pour six couches typiques, les points correspondant à une même couche sont joints par un trait.

L'épaisseur de la couche ne se manifeste pas comme un facteur influent sur  $k$ .

Les diverses couches chimiques donnent des

#### BIBLIOGRAPHIE.

GIBSON. — *Proc. Phys. Soc.*, 1950, **63**, 756.

PAUL W., JONES D. A. et JONES R. V. — *Proc. Phys. Soc.*, 1951, **64**, 528.

AVERY D. G. — *Proc. Phys. Soc.*, 1951, **64**, 1087.

GIBSON. — *Proc. Phys. Soc.*, 1952, **65**, 378.

CLARK et CASHMAN. — *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 1043.

## CONTRIBUTION A L'ÉTUDE DES CATHODES A LA THORINE (1)

Par G. MESNARD,

Institut de Physique générale de l'Université de Lyon.

**Sommaire.** — On indique d'abord le mode de préparation des « cathodes » (couches de thorine sur un fil de tungstène); la méthode électrophorétique est notamment décrite et quelques aspects des phénomènes d'électrophorèse sont envisagés. Ces cathodes sont étudiées sous vide à divers points de vue, en fonction de la température et des traitements thermiques. L'évolution structurale décelée directement est ensuite traduite dans les résultats de mesures de résistance de la cathode, de puissance appliquée, d'émissivités spectrale et totale. Les propriétés thermioniques sont alors analysées : activation, effets du passage du courant, évolution au cours du temps, divers paramètres influençant l'émission, constantes de l'émission, corrélation avec les propriétés précédentes, forme des caractéristiques et mécanisme de l'émission. Des études de conductivité aux diverses densités de courant, d'effet thermoélectrique et d'effet redresseur achèvent de préciser le modèle semi-conducteur de la thorine.

Des essais récents [1] ont montré l'intérêt de la thorine comme cathode thermionique. Nous avons précisé quelques évolutions et mécanismes en envisageant diverses propriétés de couches de thorine sur le tungstène sous vide en fonction de la température.

**Préparation des cathodes.** — La thorine est déposée sur un fil de tungstène de 0,1 mm de diamètre. Celui-ci a été préalablement dégraphité (lors du passage à la filière il a en effet conservé du graphite colloïdal utilisé comme lubrifiant) : on a opéré avec de la soude, qui donne avec le tungstène partiellement oxydé sous-jacent un tungstate soluble (facilement enlevé par frottement ou par trempage dans l'eau bouillante), et par chauffage dans l'hydrogène entre 1000 et 1500° (l'opération est pratiquée sous une cloche, le fil, chauffé par effet Joule, étant bien tendu, ce qui le rendait rectiligne). Éventuellement le fil a été poli électrolytiquement, pour améliorer sa régularité, à l'aide d'une solution de soude : l'action anodique est la plus efficace (formation de tungstate qui se dissout) et nous avons trouvé des résultats analogues à ceux de Jacquet [2], notamment en ce qui concerne la forme des caractéristiques courant-tension (qui comportent des paliers) et les diverses sortes d'attaques du fil qui ne conduisent pas toutes à un bon polissage (on peut obtenir des facettes brillantes irrégulières ou une attaque inégale laissant le fil mat).

Les procédés classiques de dépôt (préparations au trempé, au pinceau, au pistolet) peuvent être pratiqués en employant comme liants des collo-

dions plus ou moins épais et notamment des colloïdions rendus solubles dans l'alcool. La méthode du pistolet donne notamment des revêtements assez réguliers, qu'il faudra ensuite chauffer très lentement, afin d'éviter une décomposition explosive du collodion. Lorsqu'un dépôt a été réalisé sans collodion, un trempage dans le collodion lui donne ensuite une excellente tenue après séchage.

La méthode électrophorétique est toutefois la meilleure. On peut la mettre en œuvre à partir d'une solution colloïdale de thorine : c'est ainsi que la thorine anhydre, lorsqu'elle a été préparée par calcination modérée, donne avec l'acide chlorhydrique, après une série d'évaporations avec un peu de cet acide ou d'acide azotique, un liquide sirupeux qui se dissout dans l'eau en donnant une solution partiellement colloïdale; en fait, on obtient difficilement une solution stable conduisant à de bons dépôts. Il vaut mieux utiliser directement la poudre fine du commerce en suspension dans l'alcool ordinaire [3] : les proportions sont de quelques grammes pour 100 cm<sup>3</sup>. Dans l'alcool absolu, le revêtement est médiocre et se forme très lentement; il devient fragile, irrégulier et gélatineux en présence d'eau. Des dépôts cataphorétiques réguliers et abondants ne peuvent être obtenus qu'en ajoutant un peu de nitrate de thorium, destiné à charger les particules de thorine et à stabiliser la suspension; il est bon, en outre, que l'alcool contienne un peu d'eau, mais pas plus de 10 pour 100 sous peine de retrouver des dépôts gélatineux qui se désagrègent. S'il y a trop de nitrate, celui-ci se dépose également et conduit à un revêtement craquelé formé de plaquettes lisses peu adhérentes sur le support.

Même avec un bain convenable, la densité de courant ne doit pas être choisie arbitrairement. Une tension trop faible ne permet pas le dépôt

(1) Résumé d'une thèse présentée le 5 juin 1952 devant la Faculté des Sciences de l'Université de Paris.



des grosses particules de thorine : ce dépôt est faible, lisse et craquelé. Une tension de quelques volts (pour notre cuve dont l'anode avait 4 cm de diamètre) conduit au contraire à un bon revêtement d'aspect sablé. Au delà, il est plus grossier et moins régulier; si l'on augmente la tension, on obtient des petits mamelons se détachant facilement, puis des mamelons plus gros et plus adhérents. Enfin, les hautes tensions conduisent à des dépôts meilleurs, mais avec des trous, creux et crevasses. La grosseur des grains et le diamètre du fil ont une nette influence sur les valeurs à adopter; seuls les grains petits et moyens de la poudre se déposent; leur diamètre moyen était de l'ordre du micron. Les revêtements envisagés dans la suite ont une épaisseur de quelques dizaines de microns; leur porosité est de l'ordre de 30 pour 100; le retrait sera faible et ne se manifestera par quelques craquelures qu'après des traitements poussés.

**Quelques aspects et mécanismes de l'électrophorèse.** — Des travaux antérieurs [4] ont précisé l'influence de la concentration et de la température sur le poids de dépôt obtenu. Nous envisagerons d'autres aspects.

**1° Polarisation des électrodes.** — Au cours de la cataphorèse le courant, à tension constante, diminue, d'abord rapidement, puis de plus en plus lentement, jusqu'à une valeur quasi stationnaire. Cela ne doit pas être attribué à la résistance croissante du revêtement, qui est toujours négligeable, mais à une polarisation des électrodes, notamment de la cathode filiforme, tout au plus facilitée par la présence du revêtement poreux, l'anode étant cylindrique et de grande surface. Lorsqu'on inverse le sens de la tension, on obtient d'ailleurs une polarisation bien plus grande, le courant tendant, en général, vers zéro. Ces effets s'accroissent à mesure que les proportions de nitrate et d'eau augmentent : il s'agit d'un effet des ions de la cuve, qui dépend aussi de la nature des électrodes et notamment de l'électrode filiforme. Il n'y a pas de f. c. é. m. de polarisation importante, bien que la cuve préalablement polarisée soit capable de débiter un faible courant; il se forme essentiellement une couche résistante sur le fil, qui est une gaine d'hydrogène lorsqu'il est cathode et une couche d'oxyde lorsqu'il est anode (oxydation anodique). Une polarisation analogue se produit si le bain ne contient que du nitrate de thorium sans thorine. Elle disparaît lorsque le fil est cathode dès qu'il est sorti de la cuve ou lorsqu'on l'agite, l'hydrogène s'échappant. Ces effets de polarisation sont très vite détruits par un courant inverse, qui prend une valeur initiale plus grande que la précédente et même souvent que celle que l'on aurait obtenue sans polarisation préalable. Il y a un léger redressement du courant alternatif.

**2° Théorie des dépôts.** — La théorie de Hamaker et Verwey [5] permet d'expliquer les dépôts obtenus avec les divers bains : les particules entraînées par le champ électrique vers la cathode ne s'y déposent pas immédiatement en vertu de leur répulsion mutuelle; le dépôt n'a lieu que lorsque leur concentration atteint une valeur critique. Pour une suspension peu stable, la distance critique est grande par suite de l'importance des forces de cohésion et une floculation se produit avant même la formation du dépôt qui est peu cohérent et peu adhérent (c'est le cas quand il y a trop peu de nitrate et d'eau); une suspension de nitrate conduit à une très faible distance critique et par suite à un dépôt très lisse (mais quand il y a trop d'eau l'électrolyse devient prépondérante); notre suspension usuelle donne un dépôt moins lisse, mais cependant régulier, la distance critique étant un peu plus grande. Les dépôts obtenus par sédimentation sont analogues aux précédents.

Les variations d'aspect obtenues quand la tension varie s'expliquent également. A très basse tension seules les petites particules interviennent avec une faible distance critique; puis le dépôt est plus grossier mais régulier et non craquelé (moins de retrait). A plus haute tension, les particules sont projetées rapidement sur la cathode : les forces répulsives ne peuvent contrebalancer la force du champ qui peut même en provoquer la floculation irrégulière. Cependant aux tensions élevées, cette floculation n'a plus le temps de se produire : le dépôt s'améliore, mais des trous et des crevasses sont provoqués par l'abondant dégagement d'hydrogène. Quand le diamètre du fil augmente et pour un bain contenant trop peu d'eau, la zone des mauvais dépôts (gros mamelons) s'élargit dans les deux sens. En ce qui concerne la quantité de dépôt obtenue, elle est plus faible, pour une même quantité d'électricité, à très basse tension ou après sédimentation, car il intervient moins de particules.

**3° Forme des caractéristiques.** — La caractéristique du courant initial en fonction de la tension est incurvée jusque vers une dizaine de volts dans le sens d'une résistance décroissante, puis devient rectiligne; il y a, en outre, un coude au voisinage du volt. Lorsque le fil atteint un diamètre suffisant (par exemple 1 mm), la partie incurvée disparaît et il ne reste que le coude; elle disparaît aussi pour le courant dans le sens inverse, ainsi qu'en courant alternatif. Le courant électrophorétique est d'ailleurs toujours faible par rapport au courant ionique. La partie incurvée s'explique par une polarisation du bain qui se produit dans la région entourant le fil lorsqu'il est cathode; elle n'est d'ailleurs pas instantanée et exige un fort gradient du champ électrique. Il s'agit d'une polarisation des particules (analogue à la polarisation diélectrique) avec éventuellement une orientation de celles-ci et l'inter-

vention du cortège d'ions antagonistes associé à chaque particule (l'ensemble se déposerait, le passage du courant résultant d'effets secondaires); elle se produit dans la zone entourant le fil, où existe aussi une charge d'espace, due à la forte concentration, susceptible elle-même d'expliquer la courbure des caractéristiques. Avec un bain de nitrate, on observe des résultats analogues; lorsqu'on ajoute de la thorine à un tel bain la conductivité initiale augmente, ce qui semble indiquer que la polarisation est plus faible pour les grosses particules de thorine que pour les petites particules de nitrate, dont la polarisation peut expliquer le coude que nous avons observé.

4° *Effets de la sédimentation.* — Après la décroissance due à la polarisation des électrodes, on observe une lente remontée du courant. Cela doit être attribué à la sédimentation : les charges passeraient sur des particules de plus en plus petites, pour lesquelles la théorie permet de prévoir un courant plus intense (la densité de courant, pour une même tension, est d'ailleurs plus grande aux faibles profondeurs où les particules sont plus petites). Cette remontée, que l'on n'observe pas aux très basses tensions, se manifeste ensuite au bout d'un temps très court; ce temps augmente alors avec la tension (ainsi que la polarisation des électrodes) dans la zone des bons dépôts, puis se stabilise vers 6 mn. Puis, quand les dépôts deviennent mauvais, il diminue du fait de la diminution des effets de polarisation des électrodes, causée par la désagrégation du dépôt. Enfin aux tensions élevées, il reprend une valeur plus grande.

Lorsqu'on fait passer le courant dans la cuve après sédimentation, le courant initial obtenu est relativement élevé et la polarisation des électrodes faible car il y a peu de dépôt pouvant servir de support à la gaine d'hydrogène, dont la saturation, dans le cas général, s'explique par le fait que le dépôt ne progresse plus beaucoup en raison de la sédimentation.

**Tubes expérimentaux. Détermination de la température.** — Les cathodes, une fois préparées, sont montées dans des tubes expérimentaux analogues aux tubes radio usuels : elles sont tendues par un ruban de molybdène soudé au tungstène par l'intermédiaire de nickel ou de tantale. Les anodes éventuelles étaient préalablement traitées afin de les rendre propres : dégraissage au trichloréthylène, nettoyage du molybdène en le trempant dans une solution de nitrites de sodium et de potassium puis en le flambant dans la flamme d'un chalumeau à gaz, décapage du tantale par l'acide fluorhydrique, recuit du molybdène dans l'hydrogène et du tantale sous vide. Le pompage était conduit comme à l'ordinaire pour les tubes radio avec un bon dégazage de l'enveloppe et des conducteurs et

finalement vaporisation d'un « getter ». La cathode n'était portée qu'au rouge sombre afin de pouvoir en faire une étude détaillée ensuite.

La température était obtenue par pyrométrie. L'émissivité de la thorine étant mal connue et susceptible de variations, on a effectué la pyrométrie du support, découvert sur une petite surface; la chute de température à travers le revêtement n'est pas toujours négligeable, mais cela ne conduit pas à de grosses erreurs et d'ailleurs la température du support peut très bien servir de repère. Une étude préalable du tungstène a révélé des modifications de ses propriétés après des traitements poussés : pour un même courant de chauffage, la température et la résistance du fil augmentent avec les traitements. Une analyse détaillée des résultats permet de les expliquer par une diminution de l'émissivité totale sans variation nette d'émissivité dans le rouge ni de résistivité. Notre pyrométrie du tungstène dans le rouge sera donc valable même sans vieillissement préalable du fil de tungstène.

Un effet de refroidissement par les supports se manifeste pour nos cathodes. Il dépend des traitements thermiques : le refroidissement s'accroît par les premiers traitements jusque vers 1850° K, puis il diminue progressivement à mesure que la température de traitement augmente. Pour une cathode non entièrement recouverte de thorine, les parties recouvertes du support tendent à être plus froides : cet effet diminue nettement après un traitement modéré, puis il augmente.

**Évolution physicochimique et structurale de la cathode.** — Nos connaissances antérieures sur la thorine, les cathodes de tungstène thorié et les cathodes à oxydes ordinaires nous permettent déjà de prévoir que les traitements thermiques provoqueront l'apparition d'atomes de thorium libre au sein de la thorine et que ce phénomène expliquera les principales propriétés de nos cathodes. D'après Smithells [6], le tungstène ne réduirait la thorine qu'au-dessus de 2600° K de sorte qu'une production spontanée de thorium libre doit aussi être envisagée, bien que les mesures de dissociation thermique déjà effectuées ne conduisent qu'à des valeurs infimes du coefficient de dissociation.

L'observation à l'œil nu ne révèle de changement notable d'aspect qu'après des traitements très poussés (2500° K) : la cathode, de blanche, devient grise. Un traitement dans l'hydrogène produit un noircissement même à température modérée; le traitement de carburation conduit à une cathode noire. L'observation au microscope électronique permet de constater que les grains s'émiettent surtout après traitement poussé; la figure 1 donne une idée de ces grains après un traitement moyen (le revêtement a été dispersé aux ultrasons).

Les rayons X permettent de préciser l'état de



cristallisation de la thorine. Elle est initialement amorphe (microcristalline), mais les traitements en provoquent la cristallisation progressive. La figure 2 représente un spectre en retour après un traitement moyen. La méthode en retour consiste à observer les rayons X qui, après diffraction, reviennent dans une direction voisine de la direction incidente;

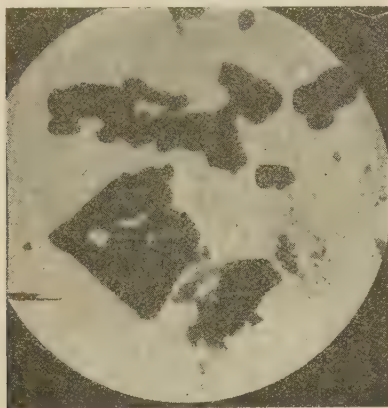


Fig. 1.



Fig. 2.

elle permet de déceler de très faibles variations de paramètre du réseau cristallin par une variation du diamètre des anneaux. Pour la thorine, ce paramètre doit diminuer du fait de la présence essentiellement de lacunes d'ions et d'atomes d'oxygène; les premières sont des défauts du réseau, les secondes sont équivalentes à la présence d'atomes de thorium libre qui seraient disposés comme les centres F classiques [7]. Les atomes de thorium doivent jouer le rôle de donneurs d'électrons vis-à-vis de la bande libre de la thorine, qui sera par suite un semi-conducteur du type N.

**Évolution des grandeurs électriques caractérisant la cathode.** — Pour une même température au centre du support, nous avons trouvé que

le courant de chauffage de la cathode  $I$ , sa résistance  $R$  et la puissance qui lui est appliquée  $W$  varient avec les traitements thermiques. Ces grandeurs commencent par décroître à mesure que la température de traitement croît jusque vers 1850° K, puis elles augmentent. Il semble qu'il faut attribuer la première évolution à la cristallisation et la seconde essentiellement à la production progressive de thorium libre ou activation; ces variations présentent d'ailleurs une grande analogie. La variation de  $R$  est à rapprocher de la variation de l'effet des bouts : il semble que celle-ci explique à peu près toutes les variations de  $R$  de sorte qu'en fait, il n'y a pas de variation importante de résistivité (si ce n'est une légère augmentation après un traitement poussé, explicable par la formation d'alliage); elle disparaît sensiblement lorsqu'on mesure la résistance entre deux prises de potentiel situées dans la zone médiane de la cathode. La variation de  $W$  est liée à une variation d'émissivité totale, mais il faut tenir compte de la transparence du revêtement et d'une chute de température à travers celui-ci.

Des variations d'épaisseur du revêtement entraînent des modifications non seulement dans les valeurs de  $I$ ,  $R$  et  $W$ , mais même dans la nature de leur évolution. C'est ainsi que pour un dépôt épais, on observe une croissance pour les faibles traitements, avant la décroissance déjà notée. L'amplitude des variations dépend de la nature de la thorine et en particulier de la grosseur des grains : pour une thorine à grains fins, les effets de la cristallisation, qui sont normalement les plus importants, s'atténuent. Si l'on compare les valeurs de la puissance dissipée par unité de surface externe de la cathode pour une même température du support et deux cathodes d'épaisseurs différentes, on trouve, avant tout traitement, une valeur plus grande pour la cathode à couche mince. Or, on devrait dans les deux cas obtenir ainsi l'émissivité totale de la thorine, car il ne semble pas qu'il ait pu déjà se produire des modifications importantes d'état différentes pour les deux épaisseurs, et de plus les valeurs obtenues pour l'émissivité sont nettement plus grandes que pour un fil de tungstène de sorte qu'il ne paraît pas nécessaire de faire intervenir la transparence de la thorine. Il y aurait donc une chute de température à travers le revêtement et l'on retrouvera la même émissivité en tenant compte de cette chute. Après la décroissance de  $W$ , les valeurs de la puissance par unité de surface externe deviennent voisines; la chute de température à travers le revêtement est devenue faible, tant que la température n'est pas trop élevée. L'émissivité totale a, en outre, nettement diminué : sa valeur initiale est de l'ordre de 0,5 tandis que sa valeur minima après traitement modéré est de l'ordre de 0,2; elle augmente ensuite lentement.

Les mesures précédentes permettent donc de

repérer commodément l'état de la cathode. Les variations précédemment indiquées étaient obtenues pour les premiers traitements à température progressivement croissante. Après avoir effectué un

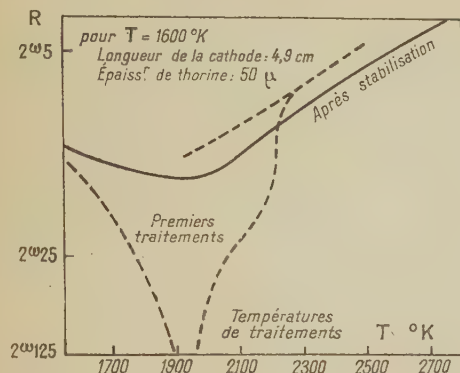


Fig. 3.

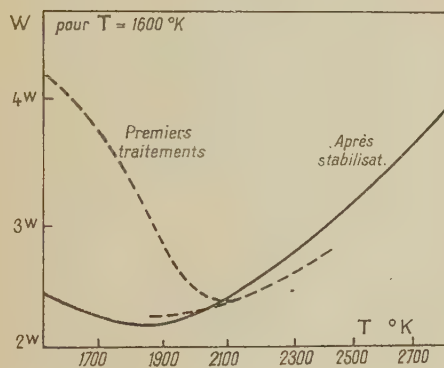


Fig. 4.

traitement poussé, si l'on effectue un traitement plus modéré, on constate une variation en sens inverse de la précédente. Il y a donc une certaine réversibilité de la cathode. D'une façon générale, une fois que les effets de la cristallisation se sont manifestés, la cathode est stabilisée : à chaque température de traitement correspond un état bien défini de la cathode, résultant de la production, de la diffusion et de l'évaporation du thorium libre (équilibre dynamique), auquel correspondent des propriétés bien définies, quelle que soit l'époque du traitement au cours de la vie de la cathode. Les variations de  $R$  et  $W$  obtenues pour une cathode avant et après stabilisation sont notées sur les figures 3 et 4 : les températures de traitements sont en abscisses, tandis qu'en ordonnées, on a indiqué les valeurs de  $R$  et  $W$  pour une même température repère du support.

Nous avons étudié l'influence du support en envisageant aussi des dépôts sur fils de platine et de tantale. Il semble en résulter que le support joue

un rôle dans l'activation qui est plus grande avec le tantale qu'avec le platine; toutefois même avec le platine on observe une activation que l'on ne peut pousser beaucoup car le platine se volatilise peu au-dessus de 2 000° K; il faut en conclure qu'une activation spontanée intervient également et même est peut-être la principale pour les traitements moyens, de sorte qu'une cathode agglomérée, sans support, s'active également.

**Propriétés rayonnantes et optiques.** — Si l'on mesure la température de brillance de la surface du revêtement dans le rouge et si l'on déduit la température vraie de la température de brillance du tungstène, on peut calculer l'émissivité apparente  $\varepsilon$  de la cathode dans le rouge. Cette émissivité varie beaucoup avec les traitements thermiques : les premiers traitements provoquent une légère décroissance si le revêtement n'est pas trop épais, mais l'évolution essentielle est une croissance qui se produit à partir de 1850° K et qui continue jusqu'aux traitements poussés; pour un état donné de la cathode, elle varie peu avec la température. Les variations obtenues avant et après stabilisation sont notées pour notre cathode précédente sur la figure 5; les émissivités apparentes varient en gros entre 0,1 et 0,5.

Cette émissivité varie beaucoup avec l'épaisseur, même avant tout traitement : elle diminue quand celle-ci augmente, les couches très minces ayant une émissivité supérieure à celle du tungstène. Il faut y voir essentiellement les effets de la chute de température à travers le revêtement, qui fait que l'émissivité apparente n'est pas l'émissivité vraie. La cristallisation tend à produire une diminution d'émissivité, mais la diminution de la chute de température à travers le revêtement explique que l'on observe surtout une croissance; l'émissivité

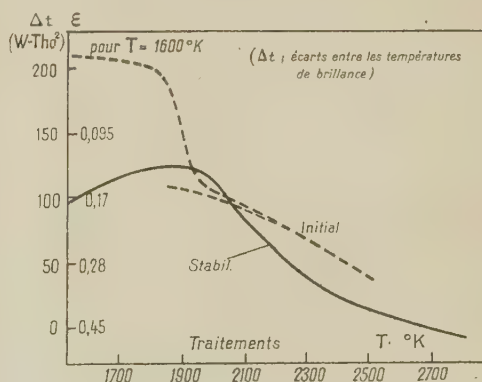


Fig. 5.

apparente obtenue ensuite diffère assez peu de l'émissivité vraie, qui varie elle-même avec les traitements; les importantes variations obtenues



pour la cathode stabilisée ne sont dues qu'à la présence d'une plus ou moins grande quantité de thorium libre, qui peut être ainsi repérée, de sorte que l'on connaît l'état d'activation de la cathode à son émissivité dans le rouge. Remarquons en particulier que lorsque la cathode est mise à l'air à froid, elle ne se désactive que lentement; on a aussi constaté une activation dans l'hydrogène (frittage) et décelé une légère influence du support.

Des variations d'émissivité ont aussi été observées par Weinreich [8], mais il négligeait toujours la chute de température à travers le revêtement. Nous avons mesuré également le coefficient de réflexion, qui lui-même n'est pas constant. L'augmentation d'émissivité par l'activation semble due à un prolongement vers le rouge de la bande d'absorption infrarouge de la thorine; il y a une certaine analogie avec les observations faites sur les halogénures alcalins. Il serait bon d'étudier aussi le spectre d'absorption; de nombreuses études faites surtout à propos du manchon Auer et du filament Nernst ont montré la variabilité des propriétés optiques de la thorine pure ou additionnée de certains corps.

**Propriétés thermioniques.** — L'émission thermionique a été étudiée avec des diodes comportant une anode cylindrique prolongée par deux anneaux de garde. Avant tout traitement la cathode n'émet qu'un très faible courant. Au contraire après avoir été portée à une température suffisante, elle est capable d'émettre un courant important, même à basse température. Il faut distinguer l'activation par le passage du courant et l'activation purement thermique, la cristallisation ne produisant pas d'effet net.

L'activation par le passage du courant se manifeste essentiellement pour les traitements modérés d'une cathode encore peu activée. Cette activation commence à des températures très basses : au début, l'effet thermique se manifeste, puis l'activation est surtout due au courant qui devient d'ailleurs plus grand. Le passage du courant ne produit pas un effet irréversible, le même traitement effectué ensuite sans passage du courant conduisant à une émission beaucoup plus faible; cette activation s'explique par une électrolyse de la thorine avec notamment production d'atomes de thorium vers le support, ces atomes diffusant ensuite vers la surface externe : il ne s'agit que d'une séparation provisoire d'atomes et d'ions. Il se produit aussi une activation par un courant inverse. L'activation par le passage du courant s'accompagne de variations de  $I$ ,  $R$ ,  $W$  et  $\epsilon$  analogues à celles que nous avons étudiées et qui résultaient de l'activation thermique.

Lorsque l'activation par le passage du courant devient faible (un peu plus de 2 000° K), elle n'est plus détruite par un traitement uniquement ther-

mique et il subsiste encore une activation thermique relativement peu importante, la seule qui puisse être envisagée pour les traitements poussés où le courant thermionique serait trop intense. Lorsqu'on n'a pas poussé à fond l'activation par le passage du courant, elle se produit par effet thermique, mais à plus haute température, et l'on obtient la même activation finale : tandis que dans le premier cas, elle était à peu près complète vers 2100° K, dans le second il faut atteindre 2 500° K; l'activation thermique semble d'ailleurs favorisée par un début d'activation par le passage du courant. Au cours de l'activation, le courant subit pour une température donnée des variations dans un rapport de 1 à près d'un million.

Au cours de l'activation, les constantes  $A$  et  $\varphi$  de l'équation de Richardson :

$$i_0 = AT^2 \exp \left[ -\frac{\varphi}{kT} \right]$$

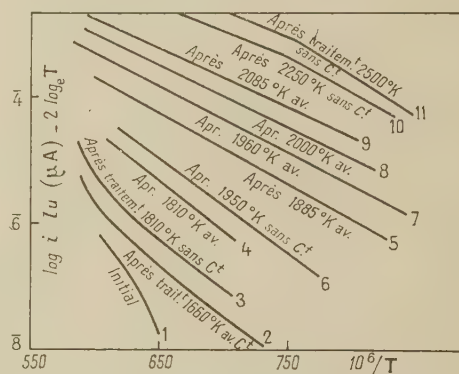


Fig. 6.

( $i_0$  étant l'émission vraie obtenue par extrapolation de la droite de Schottky) varient. Elles sont d'abord relativement élevées, puis elles diminuent quand l'activation augmente; c'est la variation de  $\varphi$  qui est essentielle et explique l'augmentation de l'émission : sa valeur décroît de 3,25 à 1,6 eV en moyenne. Nous avons représenté sur la figure 6 quelques droites de Richardson obtenues pour une cathode. Les traitements assez poussés provoquent au contraire une augmentation de  $A$  et  $\varphi$ , l'émission augmentant encore, avec une relation sensiblement linéaire entre  $\log A$  et  $\varphi$ ; on remarque alors, en outre, que la pente des droites de Richardson est plus grande aux très basses températures (1000° K par exemple).

Des effets de désactivation se manifestent après un traitement lorsqu'on se maintient à une température plus basse : ils sont dus essentiellement à une évaporation du thorium libre. Pour la cathode stabilisée, on obtient une émission initiale bien déterminée pour chaque température à la suite de chaque traitement. Les figures 7, 8 et 9 donnent

ainsi les résultats obtenus pour  $\log i$ ,  $A$  et  $\varphi$  avant et après stabilisation en fonction des traitements généralement effectués sans passage du courant pour la cathode déjà envisagée à d'autres points de

le courant n'augmente plus alors que  $I$ ,  $R$  et  $W$  augmentent rapidement et que la cathode change d'aspect : ces variations doivent, cependant, être attribuées à la présence d'une grande quantité de thorium, le support intervenant tout particulièrement dans cette production; il faut en déduire qu'un excès de thorium ne favorise plus l'émission; certains auteurs [9] ont toutefois avancé que les traitements très poussés provoquaient une augmentation de l'émission, mais qu'elle était très sensible aux gaz; nous avons bien observé une rapide désactivation après traitements poussés, mais cela peut être une évolution purement thermique.

L'épaisseur influence les valeurs de l'émission, les couches minces semblant s'activer plus facilement; on a résumé sur la figure 10, les émissions

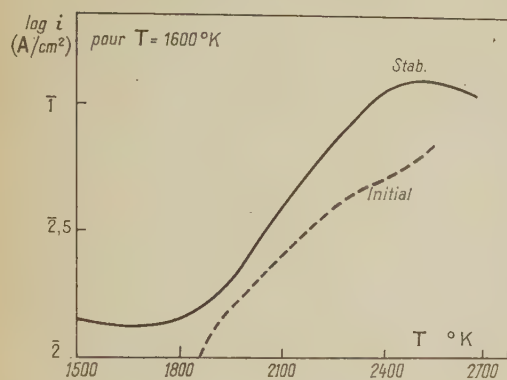


Fig. 7.

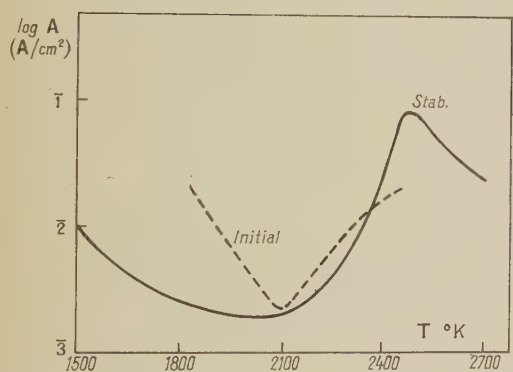


Fig. 8.

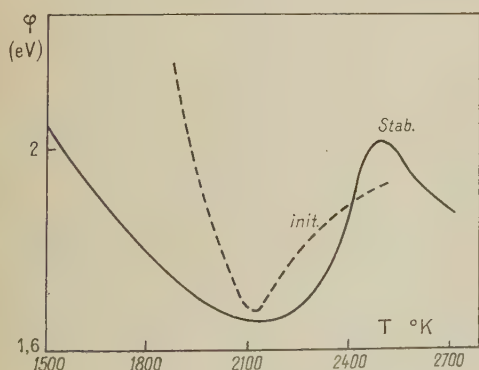


Fig. 9.

vue : on remarquera la corrélation entre les variations observées pour les diverses grandeurs. On trouve toutefois avant stabilisation que les variations essentielles de  $I$ ,  $R$  et  $W$  et dans une certaine mesure de  $\varepsilon$  se produisent avant que le courant thermionique ait atteint des valeurs importantes. D'autre part, au delà de 2500° K, on trouve que

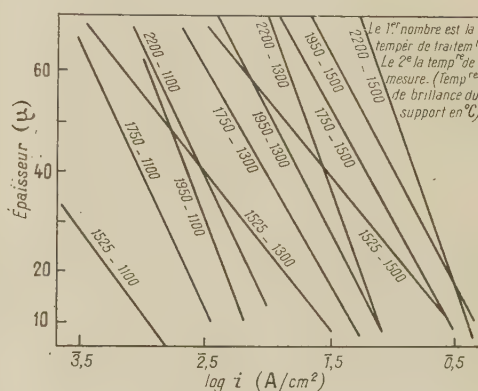


Fig. 10.

obtenues après divers traitements pour diverses épaisseurs. Sur cette figure comme sur les précédentes, les résultats correspondent à une température donnée du support; il est certain qu'en tenant compte de la chute de température à travers le revêtement, on obtiendra de plus faibles différences, mais le résultat qualitatif subsiste. La plus difficile activation pour les dépôts épais s'explique par l'influence du support moins efficace pour un dépôt épais contenant plus de thorine pour une même surface de contact support-thorine.

Nous avons fait quelques essais en régime d'impulsions (pulses de quelques microsecondes reproduits environ 4 000 fois par seconde) : l'émission n'est pas essentiellement différente de l'émission statique (pas de variation à constante de temps de l'ordre de quelques microsecondes); aucune structure interfaciale spéciale ne se manifeste. En ce qui concerne l'influence des gaz nous avons trouvé une désactivation par l'air (action chimique); elle est faible jusqu'à quelques millièmes de millimètre de mercure, surtout à haute température où le thorium libre se reproduit à mesure qu'il est oxydé, la vitesse de désactivation augmentant cependant avec la température.



Nous en déduisons les conditions d'obtention d'une bonne émission avec les cathodes à la thorine; une bonne activation doit d'abord être réalisée mais le traitement n'a pas besoin d'être très poussé, en raison de la désactivation obtenue ensuite, le courant stable dépendant à peu près uniquement de la température de fonctionnement. Celle-ci doit être aussi élevée que possible (pas plus de 2 000° K cependant afin d'avoir une durée de vie suffisante); un traitement très poussé n'augmente pas beaucoup le rendement en raison de l'augmentation de l'émissivité optique; ce rendement, qui augmente rapidement avec la température, est de quelques milliampères par watt pour 1500° K. La cathode est robuste car il se produit du thorium aux températures mêmes de fonctionnement.

**Évolution au cours du temps avec et sans extraction de courant.** — Le courant obtenu initialement, après un traitement, à une certaine température, ne se maintient pas : les variations rappellent celles qui ont été observées sur les cathodes à oxydes ordinaires. Si nous exceptons les effets des gaz, trois sortes d'évolutions sont à distinguer :

1° *Évolution thermique.* — Nous avons dit qu'à chaque température de la cathode correspondait un état d'équilibre dynamique : à température donnée, l'émission évoluera donc vers la valeur qui correspond à l'état d'équilibre pour la température considérée; une évolution de ce genre a été signalée pour la première fois par Reimann [10]; Fan [11] l'a bien précisée pour ses cathodes frittées à la thorine. Cette évolution est d'autant plus rapide que la température est plus élevée et la couche de thorine plus mince. Lorsque la température vient d'être diminuée brusquement, le courant de saturation décroît au cours du temps : la décroissance est d'abord lente (effet de la diffusion du thorium interne vers les parties externes de la cathode, responsables de l'émission), puis plus rapide (évaporation du thorium prépondérante), enfin elle s'atténue jusqu'à la valeur limite du courant. La durée de la décroissance et son amplitude augmentent, pour un traitement donné, quand la température diminue et, pour une température donnée, quand la température de traitement augmente. Lors d'une augmentation brusque de la température, l'évolution sera une croissance. On déduit de ces observations que la chaleur latente de diffusion est inférieure à la chaleur latente d'évaporation, qui est elle-même inférieure à la chaleur latente de production du thorium; une évaluation précise de ces chaleurs latentes, est délicate car, si l'on peut exprimer mathématiquement les variations au cours du temps du nombre d'atomes d'impurétés, le courant thermionique n'est pas lié simplement à ce nombre d'atomes.

Au cours de la vie de la cathode, on observe un

déclin progressif non irréversible; cela peut provenir d'une recombinaison des atomes de thorium faisant intervenir éventuellement les traces de gaz du tube. Par ailleurs, on a constaté qu'après un repos de quelques heures à la température ambiante, l'émission était souvent améliorée après un traitement modéré : on peut attribuer cela à une diffusion du thorium vers l'extérieur de la cathode, le courant produisant un effet inverse contribuant au déclin. L'évaporation du thorium contribue aussi au déclin, mais elle est en partie compensée par sa production.

2° *Influence du passage du courant.* — Tandis que pour une cathode peu activée, le passage du courant produit surtout des effets d'activation, il produit essentiellement pour une cathode bien

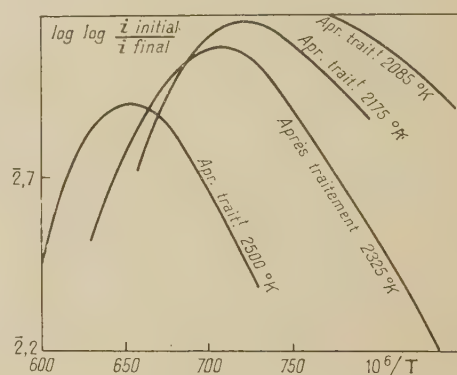


Fig. 11.

activée un déclin : le courant décroît jusqu'à une valeur limite. Ce déclin est réversible : quand le courant cesse de passer, la cathode revient progressivement à son état antérieur. Cet effet, qui est d'ailleurs assez limité, s'explique, comme pour les cathodes à oxydes [11], par la fraction ionique du courant qui tend à appauvrir en thorium libre la surface externe du revêtement tout en enrichissant la zone interne : à l'état d'équilibre, il y a un gradient de concentration du thorium libre. Pour une cathode moyennement activée le déclin s'observe dans la zone des basses températures; aux températures supérieures se manifestent un déclin suivi d'une croissance, puis seulement une croissance. L'amplitude du déclin varie avec la température et l'état d'activation, comme le montre la figure 11. Le fait que le déclin s'atténue aux températures élevées s'explique par la diffusion plus rapide vers l'extérieur des atomes de thorium et d'une façon générale par l'agitation thermique; la vitesse de déclin augmente avec la température. Une étude théorique, faite par Arizumi et Esaki [9] suivant laquelle on obtiendrait ainsi des renseignements sur les niveaux énergétiques de la thorine et l'énergie de diffusion des ions thorium, est loin d'être convain-

cante; en particulier, il faudrait bien distinguer le comportement des atomes et des ions; elle nous donne, pour un certain état, une énergie de diffusion des ions de près de 1 eV et une profondeur de la bande libre de la thorine (par rapport à l'extérieur) de l'ordre de 1,5 eV.

3° *Variations de température dues au passage du courant.* — D'autres évolutions proviennent d'une variation de température de la cathode lorsqu'elle émet des courants importants. On trouve que la température de la surface externe du revêtement diminue lorsqu'on établit le courant : cela provient du froid produit par l'évaporation des électrons [12]. Toutefois, il se produit aussi un dégagement de chaleur par effet Joule; en outre, le courant circulant le long de la cathode varie lui-même en raison de la dérivation due au courant anodique (il n'est d'ailleurs plus le même tout le long de la cathode) et cela entraîne aussi une variation de température; dans ces conditions, pour le support, on pourra obtenir soit une augmentation, soit une diminution de température. La quantité de chaleur absorbée par l'évaporation des électrons est calculable; elle provoque, à travers le revêtement, une chute de température de l'ordre de 50° pour un courant de 50 mA par unité de longueur (cm) d'une cathode de 40  $\mu$  d'épaisseur de thorine; on en a déduit pour la conductivité thermique de notre poudre de thorine une valeur de l'ordre de  $5 \cdot 10^{-5}$  cal-g/cm°degré. Cette valeur conduirait à une chute de température très grande à travers le revêtement, indépendamment du passage du courant, si l'on admet que toute la puissance fournie au support est transmise par conduction à travers la thorine : en fait, il y a surtout un rayonnement absorbé en grande partie par la thorine.

**Forme des caractéristiques et mécanisme de l'émission thermionique.** — 1° *Caractéristique aux potentiels retardateurs.* — Cette étude nous a montré que la distribution des vitesses initiales spontanées des électrons émis par la cathode était maxwellienne, mais correspondait à une température électronique nettement supérieure à la température thermodynamique. Cela semble indiquer la présence d'une barrière de potentiel à la surface de la cathode (film superficiel), le coefficient de réflexion étant plus grand pour les électrons lents [13].

2° *Zone de charge d'espace.* — Une formule du type  $i^{2/3} = k(V - V_0)$  s'applique dans la zone de charge d'espace. La loi de Langmuir est donc vérifiée, mais on trouve des valeurs de  $k$  et  $V_0$  qui dépendent de la température et de l'état d'activation. La figure 12 indique pour un état bien activé les variations obtenues en fonction de la température, l'anode étant en tungstène :  $V_0$  est

alors la différence de potentiel de contact entre la thorine et le support. La variation de  $k$  peut être attribuée à l'existence de « patches », mais surtout au caractère granulaire du revêtement poreux, qui contient lui-même un gaz électronique. La résistance du revêtement ne se manifeste pas : elle est toujours faible par rapport à celle de l'espace anode-cathode.

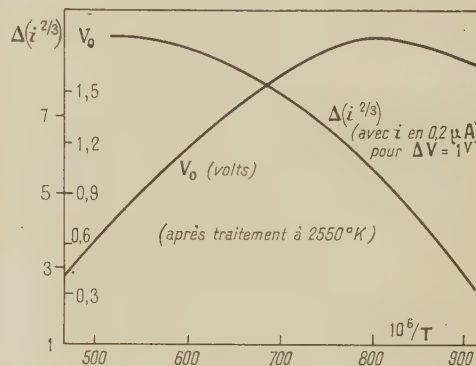


Fig. 12.

3° *Effet Schottky.* — Dans certains cas, particulièrement pour une cathode peu activée, nous avons observé que les caractéristiques présentaient une région à pente négative ou des points d'inflexion; cela semble correspondre à des déviations périodiques à l'effet Schottky [14]. En général toutefois, l'effet Schottky est analogue à celui des cathodes à oxydes; la loi de Schottky

$$\log_{10} i = \log_{10} i_0 + \frac{1,9}{T} E^{\frac{1}{2}} \quad (E \text{ en volts/cm})$$

n'est pas exactement vérifiée, la droite de Schottky est un peu incurvée vers l'axe des abscisses; sa pente est plusieurs fois la pente théorique, particulièrement après traitement poussé (il s'agit du proche effet Schottky); les variations de  $T \log i$  avec la tension augmentent d'ailleurs le plus souvent quand la température diminue.

**Structure semi-conductrice de la thorine.** — La théorie semi-conductrice [15] permet d'éclairer et de préciser les résultats antérieurs. La thorine à l'état de composition stœchiométrique est très peu conductrice : la dernière bande pleine a son niveau le plus élevé à une énergie  $\Delta E_i$  au-dessous de la bande libre (qui est vraisemblablement la bande 6d-7s du thorium). Le niveau d'impuretés se situe à  $\Delta E$  au-dessous de la bande libre; remarquons que l'on peut envisager diverses impuretés car, outre, des atomes de thorium, on peut imaginer des ions thorium possédant moins de quatre charges positives. Soit enfin  $\varphi_0$  la profondeur de la bande libre par rapport à l'extérieur. La thorine se comporte, en



général, comme un semi-conducteur du type N, pour lequel le nombre  $n$  d'électrons excités dans la bande libre est très inférieur au nombre  $N$  d'électrons des niveaux d'impuretés (par unité de volume).

Dans ces conditions, le travail de sortie est  $\varphi_0 + \frac{\Delta E}{2}$ .

D'autre part, le niveau de Fermi dans le support est à un niveau  $U$  au-dessous de la bande libre; on a

$$U = \frac{\Delta E}{2} - \frac{1}{2} kT \ln \frac{N}{\left( \frac{2\pi mkT}{h^2} \right)^{3/2}}$$

et la différence de potentiel de contact entre le support et la thorine est

$$V_0 = \frac{1}{2} [\varphi_w - (\varphi_0 + U)],$$

$\varphi_w$  étant le travail de sortie du tungstène. On a d'ailleurs

$$i_{\text{thermionique}} = A_0 T^2 \exp \left[ -\frac{\varphi_0 + U}{kT} \right],$$

avec

$$A_0 = \frac{4\pi me k^2}{h^3} \text{ par cm}^2,$$

$A_0$  étant la constante universelle. Mais  $U$  varie avec la température de sorte qu'il vaut mieux écrire

$$i_{\text{par cm}^2} = A_0 T^2 \frac{N^{1/2} h^2}{(2\pi mk)^{3/2}} \exp \left[ -\frac{\varphi_0 + \frac{\Delta E}{2}}{kT} \right];$$

dans ces conditions pour obtenir le travail de sortie, il ne faut pas envisager exactement les droites de Richardson usuelles, mais la correction est faible.

L'étude expérimentale de la différence de potentiel  $V_0$  a montré que le sens de sa variation avec la température était différent aux très basses et aux moyennes températures. L'explication la plus plausible fait intervenir les défauts du réseau, résultant des traitements, qui sont restés figés ensuite : ils agissent comme des pièges pour les électrons de la bande libre; on rend compte ainsi du comportement particulier aux basses températures et aussi de la pente plus élevée des droites de Richardson [16]. Cependant, la variation de  $V_0$  aux températures moyennes est plus grande que celle qui est prévue par la théorie; il est certain qu'il faut tenir compte de la structure granulaire du revêtement, et en particulier de l'existence de niveaux de Tamm à la périphérie des grains et du revêtement, conduisant à de nouvelles différences de potentiel. Les valeurs de  $N$  que l'on peut déduire des résultats expérimentaux confrontés avec la théorie ne peuvent donc être qu'une indication très grossière : nous obtenons des valeurs de l'ordre de  $10^{14}$ - $10^{15}$  par centimètre cube, qui paraissent faibles.

Les variations de  $A$  et  $\varphi$  semblent devoir être attribuées essentiellement à l'existence d'un film superficiel variable dont l'enrichissement provoque une diminution de  $A$  (par suite du coefficient de réflexion des électrons) et de  $\varphi$  (par l'intermédiaire de  $\varphi_0$ ), son appauvrissement produisant des évolutions inverses : les premières variations se produisent pendant l'activation essentielle, les traitements poussés produisant les secondes par suite de l'évolution du film superficiel due à l'évaporation intense (et aussi pour  $A$  parce que  $N$  augmente). Toutefois, si une augmentation de  $N$  peut expliquer une augmentation de  $A$ , elle peut aussi expliquer une diminution de  $\varphi$  (niveaux d'impuretés s'élargissant en une bande et existence de pièges); on peut aussi faire intervenir plusieurs sortes d'impuretés; ces effets paraissent toutefois secondaires. Aux traitements très poussés peut se produire une agrégation des atomes d'impuretés et le travail de sortie doit peut-être être interprété différemment, par exemple en faisant intervenir la théorie de de Boer [17].

**Conductivité aux faibles densités de courant et phénomènes connexes.** — Pour mesurer la conductivité de la thorine, nous avons utilisé deux fils de tungstène parallèles et très voisins, enrobés dans la thorine déposée par électrophorèse sur l'ensemble : ces fils servent à la fois à chauffer la thorine et à mesurer sa résistance en les prenant comme électrodes. La résistance a été évaluée par l'intermédiaire de la caractéristique courant-tension tant en continu qu'en alternatif. Lorsque les deux fils ne sont pas à la même température, on peut aussi mesurer la f. é. m. thermoélectrique. Ce dispositif expérimental permet aussi la mesure du pouvoir inducteur spécifique de la thorine, de sa conductivité thermique (à partir des puissances appliquées à chaque fil et du gradient de température qui en résulte) et l'étude des effets interfaciaux.

En ce qui concerne la conductivité nous avons trouvé que la loi d'Ohm était vérifiée tant que la tension appliquée est suffisamment faible (de l'ordre du volt). La figure 13 précise quelques résultats ainsi obtenus aux très faibles densités de courant, en fonction de la température et des traitements (d'ailleurs assez modérés); il faut surtout remarquer les variations relatives de la conductivité, les valeurs absolues étant mal connues; il s'agit d'ailleurs de la conductivité apparente d'une poudre. On remarque qu'un traitement modéré conduit à une diminution de la conductivité; ce résultat doit être attribué à la cristallisation; on obtiendrait ensuite des conductivités beaucoup plus grandes. Après traitement, on peut considérer les courbes comme formées de deux demi-droites correspondant à des énergies d'activation de l'ordre de 1 eV aux basses températures et 3 eV aux températures élevées. Les deux

mécanismes correspondants semblent être respectivement une conductivité due aux impuretés et une conductivité intrinsèque. Sans doute faut-il tenir compte de la conduction par les pores, mais le mécanisme prévu par Loosjes et Vink [18] ne semble pas pouvoir expliquer les résultats obtenus aux températures élevées. Cette conduction par les pores devrait conduire à une caractéristique incurvée vers l'axe des  $V$ ; cela a bien été observé dans certains cas, mais il faut tenir compte de ce que des électrons thermioniques peuvent se manifester avec une saturation; au contraire, on obtient le plus souvent une courbure dans l'autre sens lorsque la tension augmente.

L'effet thermoélectrique est peu en accord avec la théorie semi-conductrice simple, comme c'était déjà le cas pour  $V_0$  et  $U$ ;  $\frac{U}{e}$  est d'ailleurs la f. é. m. Peltier au contact tungstène-thorine, tandis que

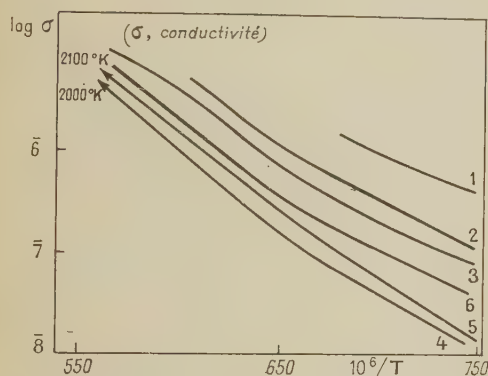


Fig. 13.

la f. é. m. thermoélectrique par degré est égale à  $\frac{U}{eT}$ . Cet effet se présente sous une forme assez complexe. Son sens est toutefois conforme à celui que l'on pouvait prévoir pour un semi-conducteur du type N; la f. é. m. thermoélectrique augmente avec la température et l'activation, sa valeur étant de l'ordre de quelques millivolts par degré.

En courant alternatif, nous avons trouvé une conductivité égale à celle que nous avons mesurée en courant continu. Lorsqu'il existe un gradient de température entre les deux fils, un effet redresseur se manifeste. Un effet redresseur est normal à l'interface entre un métal et un semi-conducteur comme nous le verrons et une couche interfaciale relativement résistante existe; la surface de contact étant ici très grande, ces effets interfaciaux doivent cependant être faibles et l'effet redresseur provient notamment du déplacement préférentiel d'électrons thermioniques du fil chaud vers le fil froid.

On ne peut avec notre dispositif actuel faire des mesures aux fortes densités de courant en raison d'importants effets du passage du courant : on peut

distinguer les effets de polarisation qui tendent à en provoquer la diminution et les effets d'activation qui tendent à l'augmenter. Ces derniers sont les plus importants : si à une température donnée, on applique une tension progressivement croissante, à partir d'une certaine tension (qui diminue quand la température s'élève tandis que le courant correspondant augmente) le courant croît spontanément, d'abord lentement, puis de plus en plus vite jusqu'à une certaine stabilisation avec des fluctuations importantes. L'explication est analogue à celle qui intervenait pour l'activation thermionique. L'agitation thermique fait disparaître progressivement cette activation. Si, après l'activation, on inverse le sens du courant, le courant inverse a d'abord une valeur du même ordre que la précédente, mais il décroît rapidement, puis croît : l'activation est donc un phénomène dirigé. Après activation par le passage du courant, la loi d'Ohm n'est plus vérifiée, la résistance obtenue à basse tension étant plus grande, ainsi que la résistance obtenue dans le sens inverse; lorsqu'on inverse le sens de la tension à cadence rapide, on obtiendra alors un courant moyen, qui tend à augmenter dans un sens et à diminuer dans l'autre. L'activation ne se produit pas nettement en courant alternatif.

#### Conductivité aux fortes densités de courant.

— Si l'on utilise le fil recouvert de thorine comme anode d'une diode dont la cathode est, par exemple, un fil de tungstène porté à très haute température, la résistance de la thorine peut être mesurée si sa température n'est pas trop élevée : la chute de tension à travers le revêtement est déduite de la tension anodique  $V$  et de la tension  $V_1$  nécessaire pour obtenir le même courant lorsque la thorine est portée à une température suffisante pour que sa résistance soit négligeable : cette chute, pour le courant considéré, est  $V - V_1$ , à la variation de différence de potentiel de contact près. Les effets d'activation se manifestent par le passage de ce courant inverse à travers la thorine; ils sont toutefois nettement plus faibles que pour notre dispositif précédent ou pour l'autre sens du courant, de sorte que l'on peut faire des mesures à de fortes densités de courant. Nous avons trouvé des caractéristiques incurvées dans le sens d'une diminution de la résistance quand la densité de courant augmente; la conductivité initiale est de l'ordre de  $3 \cdot 10^{-7} \text{ (ohm.cm)}^{-1}$  à  $1200^\circ \text{ K}$ ; elle varie assez peu pour les premiers traitements, puis elle augmente rapidement : par exemple après traitement à  $1830^\circ \text{ K}$  sa valeur était multipliée par 10. L'augmentation de conductivité est beaucoup plus nette que celle que l'on observait aux faibles densités de courant et sa diminution initiale a sensiblement disparu.

Une autre méthode consiste à mesurer la résistance entre le support et une électrode enrobée



dans la thorine; la région du fil voisine de cette prise de potentiel interviendra pratiquement seule. Les résultats obtenus ne doivent pas être utilisés au hasard : le contact entre la prise de potentiel et la thorine est, en effet, rectifiant [19]; ce phénomène est très accusé car au voisinage de cette électrode très petite les lignes de courant sont très concentrées : la résistance de cette zone est, d'ailleurs, relativement grande et la quasi-totalité de la chute de potentiel y est localisée. Le sens privilégié du courant est celui qui va de la prise de potentiel vers la thorine : un tel résultat est caractéristique d'un semi-conducteur du type N. D'autre part, les phénomènes d'activation par le passage du courant sont beaucoup plus accusés lorsque la prise de potentiel est cathode que lorsqu'elle est anode : il semble en résulter que les ions en mouvement sont les ions thorium, qui dans le premier cas vont vers la prise de potentiel, et l'activation par le passage du courant prend, d'une façon générale, naissance essentiellement au voisinage de l'électrode pour laquelle le courant se dirige de la thorine vers le métal. Lorsque la prise de potentiel est anode, on évitera ici facilement l'activation, même pour les fortes densités de courant près de la prise de potentiel.

Aux faibles tensions (quelques dixièmes de volt) on obtient la caractéristique de l'interface qui ne nous renseigne pas sur la conductivité de la thorine; puis, dans le sens bon conducteur, on mesure à un facteur près la conductivité de la thorine. On trouve encore (en gros, car les caractéristiques apparaissent complexes) que la conductivité augmente avec la densité de courant; cela s'explique probablement par le caractère granulaire, bien que l'on puisse aussi admettre que le champ électrique produit lui-même une excitation des électrons augmentant la conductivité, indépendamment des effets d'activation dus au courant, contrairement à l'opinion de Danforth et Morgan [20] qui ont obtenu quelques résultats qui rappellent les nôtres. Les caractéristiques sont toutefois plus rectilignes avant activation et vers les hautes températures; cela doit être attribué alors à la prépondérance d'une

conductivité intrinsèque qui apparaît nettement sur la figure 14 où l'on voit, en outre, la conductivité due aux impuretés se manifester avec des valeurs de plus en plus grandes quand l'activation augmente, dans la zone des températures moyennes. L'énergie d'activation intrinsèque est de l'ordre de 3,25 eV; celle qui correspond aux impuretés est un peu inférieure à 1 eV et semble diminuer légèrement quand l'activation augmente. Si l'on remarque que ces énergies d'activation sont respectivement égales à  $\frac{\Delta E_i}{2}$  et  $\frac{\Delta E}{2}$ , ces mesures achèvent de déterminer les niveaux énergétiques dans la thorine; nous pouvons adopter  $\Delta E_i = 6,5$  eV,  $\frac{\Delta E}{2} = 0,8$  eV; on en déduira pour  $\varphi_0$  la valeur 1 eV pour une

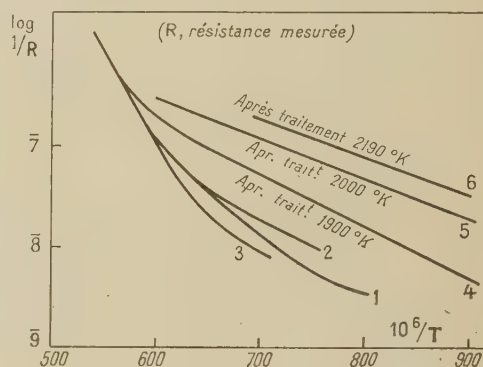


Fig. 14.

cathode bien activée. Les droites de Richardson permettaient elles-mêmes d'observer le mécanisme intrinsèque avant toute activation appréciable.

Nous tenons à remercier M. le Professeur G. Déjardin, Directeur de l'Institut de Physique générale de l'Université de Lyon, qui a suivi de très près ce travail.

Manuscrit reçu le 18 septembre 1952.

## BIBLIOGRAPHIE.

- [1] WEINREICH O. — *Rev. Gén. Electr.*, 1945, **54**, 243-255. — WRIGHT D. A. — *Nature*, 1947, **160**, 129-130; *Proc. Phys. Soc.*, 1949, **62** B, 188-203. — DANFORTH W. E. — *J. Frank. Inst.*, 1951, **251**, 515-520.
- [2] JACQUET P. — *Thèse*, Paris, 1938.
- [3] HANLEY T. E. — *J. Appl. Physics*, 1948, **19**, 583-589.
- [4] HAMAKER H. C. — *Trans. Faraday Soc.*, 1940, **36**, 279-287. — BIGUENET Ch. et MANO C. — *Le Vide*, 1947, **10** et **11**, 291.
- [5] HAMAKER H. C. et VERWEY E. J. W. — *Trans. Faraday Soc.*, 1940, **36**, 180-185.
- [6] SMITHELLS C. J. — *J. Trans. Chem. Soc.*, 1922, **121**, 2236.
- [7] MOTT N. F. et GURNEY R. W. — *Electronic Processes in Ionic Crystals*, Oxford University Press, 1940.
- [8] WEINREICH O. A. — *J. Appl. Physics*, 1950, **21**, 1272-1275.
- [9] ARIZUMI T. et ESAKI L. — *J. Phys. Soc. Japan*, 1950, **5**, 163-169 et 174-177.
- [10] REIMANN A. L. — *Thermionic Emission*, Chapman et Hall, 1934, chap. 4. — BLEWETT J. P. — *J. Appl. Physics*, 1939, **10**, 668 et 831.
- [11] FAN H. Y. — *J. Appl. Physics*, 1949, **20**, 682-690.
- [11'] BLEWETT J. P. — *Phys. Rev.*, 1939, **55**, 713 et loc. cit.
- [12] REIMANN A. L. — *Loc. cit.*, p. 50.
- [13] NOTTINGHAM W. B. — *Phys. Rev.*, 1936, **49**, 78.

- [14] COOMES E. A. et LABERGE W. B., BROCK E. G. et HOUE FR., FINN G. B. et LABERGE W. B. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 319.
- [15] FOWLER R. H. — *Statistical Mechanics*, 2nd ed., Cambridge, 1936. — WILSON A. H. — *Metals and Semi-conductors*, Cambridge, 1939. — WRIGHT D. A. — *Semi-conductors*, Methuen, London, 1950.
- [16] NIJBOER B. R. A. — *Proc. Phys. Soc.*, 1939, **51**, 575.
- [17] DE BOER J. H. — *Electron Emission and Adsorption Phenomena*, Cambridge, 1935.
- [18] LOOSJES R. et VINK H. J. — *Philips Res. Rep.*, 1949, **4**, 449.
- [19] TORREY H. C. et WHITMER C. A. — *Crystal Rectifiers*, Mc Graw-Hill, New-York, 1948.
- [20] DANFORTH W. E. et MORGAN F. H. — *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 142-144.

## MESURE DES DENSITÉS DE NEUTRONS PAR AUTORADIOGRAPHIE DE DÉTECTEURS

Par A. ERTAUD et P. ZALESKI,

Service de la Pile de Châtillon.  
Commissariat à l'Énergie atomique.

**Sommaire.** — On présente une méthode de mesure de densité de neutrons qui consiste à faire l'autoradiographie par rayons  $\beta$  du détecteur mince irradié dans le flux de neutrons à mesurer. On décrit, en particulier, les méthodes de préparation et d'étalonnage des détecteurs, le choix et l'étalonnage des émulsions. La méthode est très sensible et très précise, particulièrement adaptée pour des variations très rapides du flux de neutrons sur une petite étendue. Elle semble convenir particulièrement à l'étude expérimentale du comportement des neutrons au voisinage d'absorbeurs forts ou dans une région où sont placés plusieurs matériaux de qualités très différentes et d'assez faibles dimensions (cellules de piles, par exemple).

**Introduction.** — L'autoradiographie par utilisation des rayonnements  $\beta$  est une technique bien connue [1]. Elle a déjà de très nombreuses applications <sup>(1)</sup> dans les domaines métallurgiques [2], [3], [4], [5], minéralogiques [6], [7], [8] et biologiques [9], [10], [11].

Nous l'avons appliquée à la mesure de variations de densités de neutrons, en particulier lorsque ces variations sont très rapides d'un point à un autre de la région à étudier [12]. Les chambres d'ionisation, les thermopiles à bore ou autres appareils similaires sont difficilement utilisables lorsqu'il s'agit d'explorer les variations de densités de neutrons à l'intérieur de substances diffusantes et absorbantes à cause de leur volume non négligeable, perturbant la distribution spatiale des neutrons.

L'emploi de détecteurs dont on mesure l'activité par comptage après irradiation présente les mêmes inconvénients à un degré beaucoup plus faible; mais il est difficile, long et imprécis, lorsque le flux de neutrons varie assez brusquement dans la région étudiée. Il est souhaitable dans l'étude expérimentale de certaines questions de diffusion de neutrons de disposer d'une méthode rapide ayant un

très grand pouvoir de résolution et ne perturbant que d'une façon négligeable la distribution des neutrons.

W. Blau, I. W. Ruderman, J. Czechowski [13] ont décrit des techniques utilisant des plaques photographiques qui permettent de mesurer des variations assez rapides de densité de neutrons. Mais ces auteurs introduisent les plaques photographiques dans le flux de neutrons à mesurer, ce qui est particulièrement gênant lorsque ce flux est accompagné d'un fort rayonnement  $\gamma$ , comme c'est le cas pour les piles.

**Principe de la méthode.** — Dans la méthode d'autoradiographie de détecteurs, on place dans la région à étudier un détecteur très mince et perturbant à peine le milieu. On pratique ensuite l'autoradiographie de ce détecteur irradié en le plaçant contre l'émulsion d'un film à grain fin, la mesure du noircissement du film dû aux rayons  $\beta$  à l'aide d'un microdensitomètre fournit le résultat cherché.

Pour la plupart des détecteurs, l'émission du rayon  $\beta$  par l'isotope formé sous l'effet de la capture d'un neutron est accompagnée de l'émission d'un ou de plusieurs rayons  $\gamma$ . Toutefois, on peut négliger l'effet de ces derniers, étant donné que leur rendement photographique est nettement inférieur à celui des rayons  $\beta$ .

<sup>(1)</sup> Chaque référence renvoie à un article de base. Nous n'avons pas la prétention de donner une bibliographie même sommaire de la question.



Le principe de la méthode est donc particulièrement simple, sa mise en œuvre est, cependant, assez délicate. Il est indispensable de fixer très rigoureusement les conditions opératoires <sup>(2)</sup>. Le but de cet article est d'indiquer d'une façon détaillée la marche à suivre pour que la méthode soit utilisable. Pour obtenir un bon pouvoir de résolution dans le cadre de cette méthode, il faut réaliser un certain nombre de conditions :

- a. Utiliser des détecteurs très minces;
- b. Utiliser une émulsion relativement mince;
- c. Assurer un bon contact entre détecteur et émulsion.

Nous examinerons successivement ces différents facteurs.

**Les détecteurs et leur préparation.** — Pour

on peut dans certains cas, prendre des feuilles laminées (or ou argent, par exemple).

Il est extrêmement important que le détecteur soit d'épaisseur uniforme et bien homogène, la vérification de cette homogénéité se fait en appliquant la méthode d'autoradiographie à l'étude d'un flux de neutrons qu'on sait être constant sur l'étendue du détecteur. La mesure des variations de densité de noircissement du film est alors la mesure de l'imperfection du détecteur (en admettant un contact émulsion-détecteur et une épaisseur d'émulsion uniformes). On peut alors déterminer pour un détecteur donné la région utilisable. La figure 1 montre le résultat obtenu sur un détecteur d'argent, la mesure a été faite suivant les axes I/I, II/II, III/III; sur l'exemple donné, on voit que les détecteurs sont uniformes sur 10 cm de long et 2 cm de large.

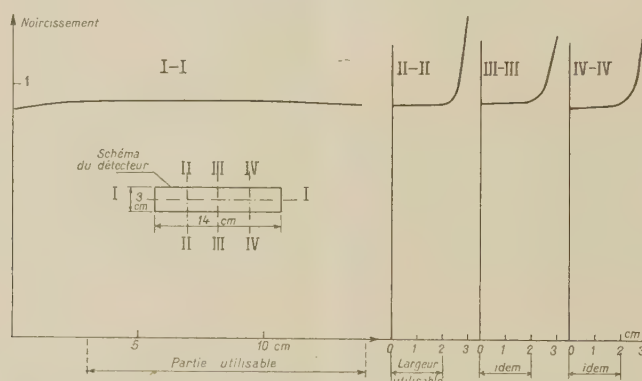


Fig. 1. — Densité de noircissement suivant différentes coupes d'un détecteur irradié dans un flux constant de neutrons.

que la distribution de noyaux actifs émetteurs  $\beta$  du détecteur, après introduction dans le flux de neutrons, représente correctement la distribution de ce flux dans la région occupée par le détecteur avant irradiation de ce dernier, il est nécessaire que la perturbation due à l'introduction du détecteur soit négligeable; aussi est-on conduit, en général, à utiliser des détecteurs dont l'épaisseur varie de quelques dixièmes à quelques dizaines de microns. Nous avons utilisé des détecteurs métalliques en couches minces déposées sur des feuilles de nitrate de cellulose de 14/100<sup>e</sup> de millimètre, ces dépôts sont obtenus par évaporation du métal dans le vide. La méthode d'évaporation sous vide donne satisfaction pour des épaisseurs ne dépassant pas quelques microns; lorsqu'on utilise des détecteurs plus épais de l'ordre de quelques dizaines de microns,

Un découpage du détecteur permet d'en utiliser la partie d'épaisseur uniforme.

**Étalonnage des films.** — Cette opération consiste à déterminer la courbe de réponse du film, c'est-à-dire la densité de noircissement en fonction du nombre de rayons  $\beta$  incidents. Si une partie de cette courbe est très sensiblement linéaire, la densité de noircissement sera alors en chaque point proportionnelle au flux de neutrons reçus par le détecteur.

Pour construire la courbe de réponse du film, il suffit d'irradier dans le flux de neutrons uniforme <sup>(3)</sup> le détecteur dont les dimensions sont assez grandes pour qu'on puisse, dans la région étudiée, négliger les effets de bord du détecteur sur la répartition des  $\beta$ . Dans le même ordre d'idée, la courbe de réponse du film sera tracée en utilisant une

<sup>(2)</sup> Il est bien évident que les plus grandes précautions doivent être prises pour le stockage des films avant exposition, le développement, le fixage, le lavage et le séchage, sous peine d'obtenir des résultats incohérents.

<sup>(3)</sup> Ce flux devra être uniforme dans l'espace et conserver, pour chaque point du milieu considéré, le même spectre de distribution d'énergie.

grande ouverture de fenêtre du microdensitomètre. Dans ces conditions, le nombre de rayons  $\beta$  émis par une telle surface du détecteur durant l'exposition du film sera proportionnel à la densité de neutrons qui régnaient dans la région où a eu lieu l'irradiation. On voit que, pour un détecteur homogène et d'épaisseur uniforme, on peut en fixant le temps d'irradiation, le temps de décroissance et le temps d'exposition, tracer les courbes de réponse du film directement en fonction de la densité de neutrons <sup>(4)</sup>, cette densité de neutrons étant mesurée à l'aide d'un autre procédé (mesure de l'activité de détecteurs étalonnés, par exemple). L'étalonnage du film en valeur relative peut aussi se faire dans un flux de neutrons donné et constant et en faisant varier le temps de décroissance du détecteur et d'exposition du film. On dispose donc de deux procédés pour l'établissement des courbes de réponse :

A. Variation de la densité de neutrons;

B. Variation du temps de décroissance et d'exposition.

La figure 2 montre que l'accord entre ces deux méthodes est très satisfaisant.

Pour le procédé A, on aura les erreurs suivantes : 1° erreur sur les épaisseurs de divers détecteurs; 2° erreur sur l'établissement des courbes de densité de neutrons (en valeur relative); 3° erreur sur l'éta-

blissement de l'autoradiographie (cette erreur étant réduite au minimum; étant donné qu'on peut exposer simultanément tous les détecteurs, en

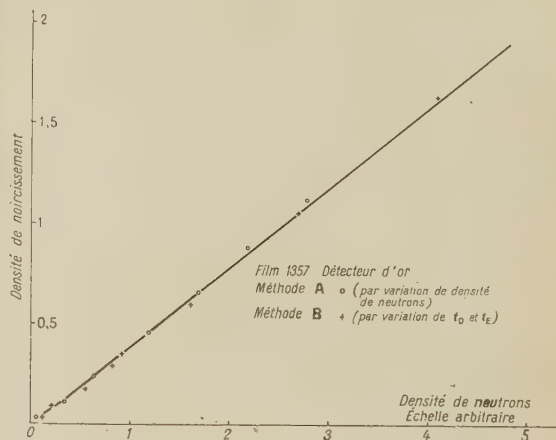


Fig. 2. — Comparaison de deux méthodes expérimentales pour le tracé d'une courbe d'étalonnage.

utilisant la même bande de film, elle provient uniquement de la non-uniformité de l'épaisseur de l'émulsion et du contact émulsion-détecteur, et de la non-homogénéité du révélateur).

Pour le procédé B, on aura : 1° l'erreur due à

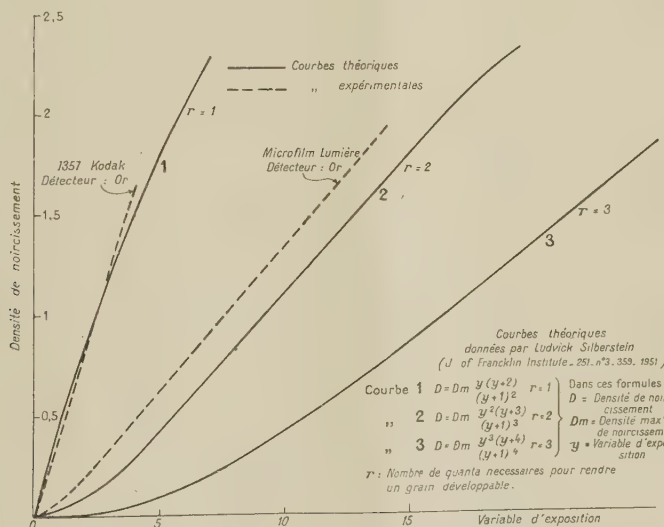


Fig. 3. — Comparaison des courbes théoriques et expérimentales.

<sup>(4)</sup> Plus précisément, si :

$N$  = nombre de rayons  $\beta$  émis par moitié de surface du détecteur pendant l'exposition du film;

$N_0$  = nombre d'atomes par unité de surface du détecteur;

$a = v\sigma$ , caractérise la section efficace du détecteur (constante pour une variation de section efficace en  $\frac{1}{v}$ )

( $v$  = vitesse des neutrons,  $\sigma_v$  = section efficace pour la vitesse  $v$ );

$\lambda$  = constante radioactive du détecteur;

$t_i, t_d, t_e$  = temps d'irradiation, de décroissance et d'exposition;

$n$  = densité des neutrons;

$$N = \frac{N_0(1 - e^{-\lambda t_i})}{\lambda} an[e^{-\lambda t_d} - e^{-\lambda(t_d + t_e)}], \text{ pourvu que } \sigma_v = \frac{a}{v}.$$



l'imprécision sur la période du détecteur; 2° l'erreur sur la mesure de  $t_d$  et  $t_e$ ; 3° l'erreur sur l'établissement de l'autoradiographie (contact épaisseur d'émulsion, développement, fixation, lavage et séchage) qui est plus importante que pour le procédé A, étant donné qu'il s'agit ici d'opérations distinctes. L'erreur maximum estimée pour les deux méthodes est de  $\pm 5$  pour 100.

Les rayons  $\beta$  qui émergent d'un détecteur de nature et d'épaisseur données pour pénétrer dans l'émulsion ont une certaine distribution énergétique et angulaire. On sait que la sensibilité intrinsèque

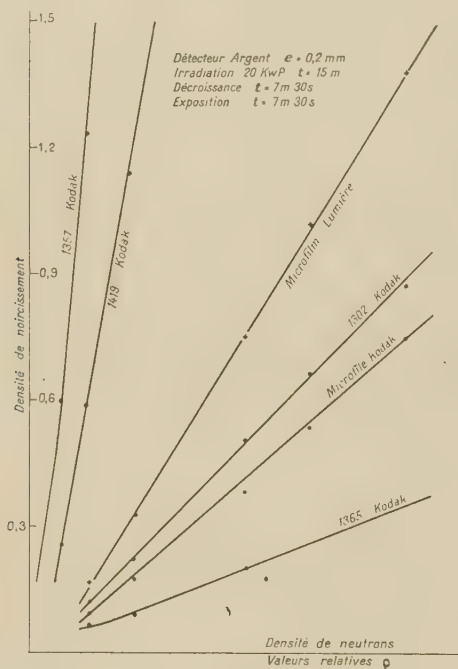


Fig. 4. — Comparaison de différents films.

d'un grain photographique aux rayons  $\beta$  varie avec l'énergie de celui-ci [14]. Pour un ensemble détecteur-émulsion donné, les rayons  $\beta$  pénètrent dans l'émulsion avec une distribution énergétique donnée et y subissent un ralentissement déterminé; on peut donc admettre, pour un tel ensemble, une certaine sensibilité moyenne. Nous avons essayé de comparer les courbes de réponse expérimentales avec les courbes que l'on peut déduire de la théorie quantique de l'exposition de Silberstein [15]; on constate que les courbes expérimentales s'approchent le plus des courbes théoriques données pour des émulsions pour lesquelles la loi de répartition du nombre de grains en fonction de leur surface est, soit une exponentielle <sup>(5)</sup>, soit une combi-

<sup>(5)</sup> C'est-à-dire que

$$f(a) da = u e^{-ua} da,$$

naison de deux exponentielles, pourvu qu'on néglige les grains excessivement petits (fig. 3). Nous avons vérifié que les courbes expérimentales peuvent être représentées par une combinaison linéaire des courbes théoriques pour  $r = 1$  et  $r = 2$ ,  $r$  étant le nombre de quanta nécessaires pour rendre un grain développable. Ceci peut s'expliquer par le fait qu'on a un spectre continu de rayons  $\beta$  et que la sensibilité intrinsèque moyenne n'est qu'une représentation de la sensibilité réelle. Dans le même ordre d'idée, il est vraisemblable que la loi de répartition du nombre de grains en fonction de leur surface est une combinaison linéaire de deux exponentielles (le calcul a été fait avec une seule exponentielle).

En utilisant la méthode A décrite ci-dessus, nous avons étalonné en valeur relative les émulsions suivantes : 1357 Kodak, 1419 Kodak, Microfilm Lumière, 1302 Kodak, Microfilm Kodak, 1365 Kodak.

Les résultats sont traduits par le réseau de courbes (fig. 4), le détecteur utilisé pour ces mesures est un détecteur d'argent de 0,2 mm d'épaisseur. On constate sur ces courbes que la région linéaire utilisable est assez étendue pour chaque émulsion et que les courbes sont très différentes suivant la nature de l'émulsion <sup>(6)</sup>.

Nous avons aussi tracé les courbes de réponse d'une émulsion donnée (fig. 5) (Microfilm Lumière) en fonction de la densité de neutrons pour divers détecteurs (Mn, In, Ag, Au). On constate l'influence du spectre de rayons  $\beta$  incidents, sur la forme de la courbe de réponse (ce spectre dépend non seulement de la nature, mais de l'épaisseur du détecteur; cependant, nous avons constaté que l'épaisseur joue un rôle relativement beaucoup plus faible que la nature du détecteur dans le domaine d'utilisation).

Pratiquement, on peut donc se permettre de dépouiller les résultats des expériences avec un certain détecteur, à l'aide des courbes d'étalonnages faits avec les détecteurs de même nature et d'épaisseur voisine.

Comme nous l'avons déjà signalé, c'est la partie sensiblement rectiligne de la courbe qui est utilisée. Dans cette partie, on a la relation

$$n = ad + b,$$

$n$  étant la densité de neutrons,  $d$  la densité du noircissement du film,  $a$  et  $b$  des constantes.

Les coefficients  $a$  et  $b$ , déterminent la courbe

$f(a)$  étant le nombre de grains par unité de surface dont la surface est comprise entre  $a$  et  $a + da$ ,  $u$  étant une constante.

On montre alors facilement que la surface moyenne d'un grain est  $\frac{1}{u}$ .

<sup>(6)</sup> La grosseur du grain étant liée avec le pouvoir de résolution, il est préférable de choisir une émulsion à grains fins (qui est, en général, moins sensible) qu'une émulsion à grains plus gros, parmi celles que les conditions d'expérience permettent d'utiliser.

d'étalonnage (ou plutôt la partie utilisée de cette courbe). Pour des mesures relatives, on peut fixer arbitrairement l'échelle, c'est-à-dire  $a$ . L'étalonnage du film consiste donc à déterminer  $b$ .

Si l'on peut obtenir dans les expériences des densités de noircissement importantes, le terme  $b$  devient faible par rapport à  $ad$ , de même que l'erreur relative due à l'étalonnage du film (imprécision

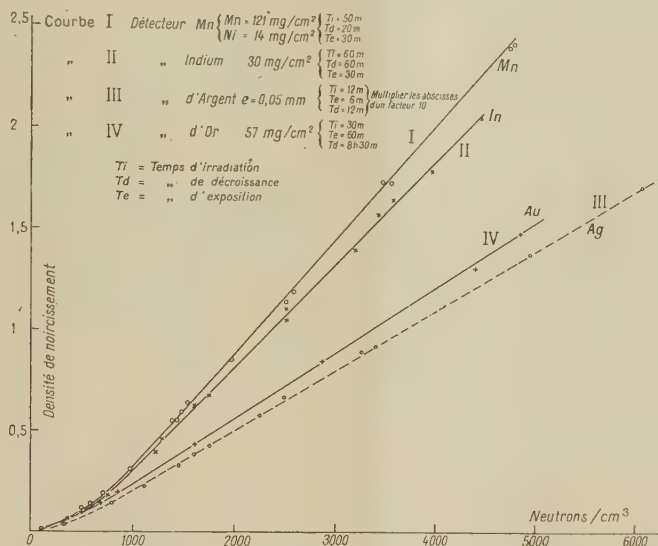


Fig. 5. — Densité de noircissement en fonction de la densité de neutrons. (Microfilms Lumière).

sur la détermination de  $b$ ). On peut remarquer que les densités de noircissement assez élevées (autour de 1) se trouvent correspondre à la région rectiligne de la courbe de réponse et nous permettent l'utilisation de fentes plus réduites du microdensitomètre (à égalité de largeur de fente les fluctuations statistiques sont moins grandes si le noircissement est plus fort).

**Étude du pouvoir de résolution.** — La méthode autoradiographique a un excellent pouvoir de résolution, c'est lui que nous allons étudier dans ce paragraphe. On peut diviser le problème en deux parties :

- 1° Autoradiographie proprement dite;
- 2° Dépouillement de cette autoradiographie au microdensitomètre.

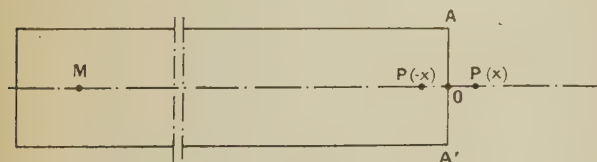


Fig. 6.

1° Pour réaliser une autoradiographie correcte, il est nécessaire que l'action d'un élément du détecteur sur un élément d'émulsion diminue rapidement quand la distance entre eux augmente. Les fac-

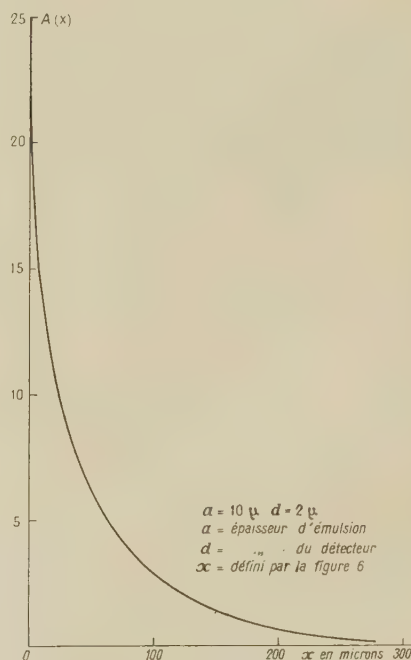


Fig. 7. — Densité de noircissement en fonction de la distance à l'arête du détecteur ( $x$ ) : courbes  $A = f(x)$ . Courbe expérimentale. Film Kodak 1357. Détecteur or.

teurs qui conditionnent la bonne réalisation de l'autoradiographie sont, d'une part la nature de



l'émulsion et du détecteur (sa densité et l'énergie des rayons  $\beta$  émis), et, d'autre part, les conditions géométriques.

La nature du détecteur est le plus souvent imposée par celle de la recherche effectuée et non par l'autoradiographie elle-même, qui n'est que le moyen de mesure.

La seule caractéristique de l'émulsion qui agisse pratiquement sur le pouvoir de résolution est la grosseur du grain. En pratique, on choisit toujours des émulsions à grains assez fins (il est quelquefois nécessaire d'utiliser des émulsions à grains moyens lorsque l'expérience exige l'emploi d'un film rapide). Les conditions géométriques sont caractérisées par trois épaisseurs : celle du détecteur, de la lame d'air séparant le détecteur de l'émulsion et celle de l'émulsion. Dans la plupart des cas, nous avons à considérer un détecteur où les sources de rayons  $\beta$  sont réparties de façon continue et varient lentement. On peut essayer d'étudier un cas limite où la variation de la densité de neutrons présente une discontinuité brutale (passe d'une valeur finie à zéro).

Considérons, pour simplifier, un détecteur irradié dans un flux uniforme et dont les dimensions sont assez grandes pour que, dans la région considérée, on puisse assimiler le détecteur à un demi-plan émetteur de rayons  $\beta$  limité par la droite AA', en admettant qu'à droite de AA' n'existe aucune source (fig. 6).

L'expérience (fig. 7) a été réalisée en coupant un détecteur mince irradié dans un flux de neutrons. homogène; on étudie ensuite l'autoradiographie dans la région de l'arête du détecteur suivant une direction perpendiculaire à cette arête. Pour le

cas de l'utilisation d'un microdensitomètre Vassy, on règle la fente d'entrée à  $5 \mu$  de largeur et  $750 \mu$  de hauteur. Le détecteur est assez large pour qu'on puisse négliger l'influence des deux bords du détecteur si l'on opère dans la région du milieu de l'arête.

Pour des raisons de symétrie, on peut considérer la différence entre la valeur de noircissement pour un point M loin de l'arête et sa valeur pour un point P' d'abscisse  $-X$ , au lieu de cette valeur pour le point P d'abscisse X (d'après la figure 6).

Ceci nous donne l'avantage de remplir mieux l'hypothèse de proportionnalité entre la densité de noircissement et l'intensité des rayons  $\beta$ . De plus, ceci écarte l'imperfection de l'expérience due au fait que dans la région, à droite de l'arête AA', l'ensemble diffusant et capturant n'est pas le même qu'à gauche (le détecteur n'existant pas à droite).

Les considérations théoriques et l'expérience (fig. 8) montrent que pour améliorer le pouvoir de

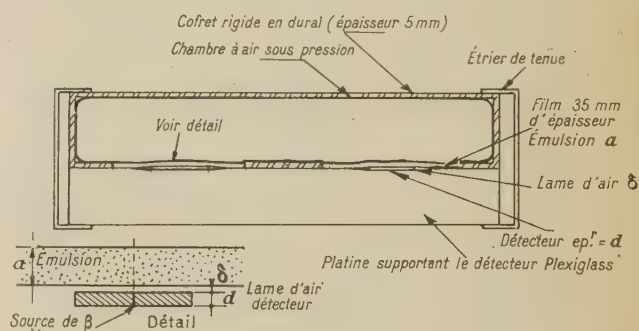


Fig. 9. — Schéma de la presse.

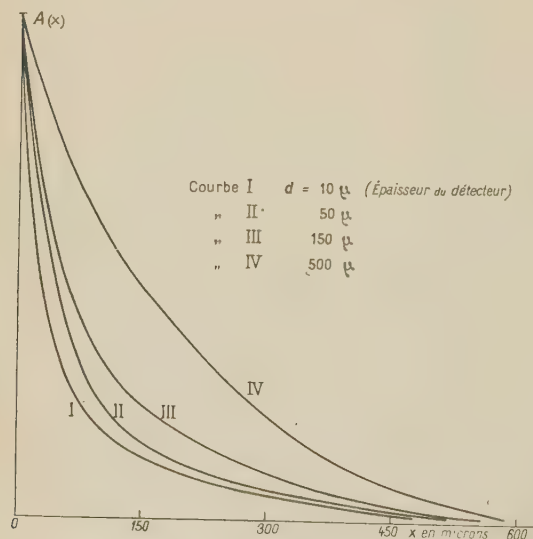


Fig. 8. — Densité de noircissement en fonction de la distance à l'arête du détecteur [ $\lambda = f(x)$ ]. Comparaison de courbes pour différentes valeurs de  $d$ . Détecteur d'argent, film Kodak 1357;  $\alpha = 10 \mu$  (épaisseur d'émulsion).

résolution, il faut diminuer les trois épaisseurs du détecteur, de la lame d'air et de l'émulsion. Pour déterminer l'épaisseur du détecteur et de l'émulsion la plus convenable, il est nécessaire de faire un compromis entre le pouvoir de résolution et la sensibilité. On a utilisé des émulsions Kodak et Lumière d'épaisseur de  $10 \mu$ . Les épaisseurs des détecteurs étaient variables suivant l'expérience (entre quelques dixièmes et quelques dizaines de microns). Quant au contact, ou autrement dit l'épaisseur de la lame d'air séparant l'émulsion et le détecteur, différentes solutions ont été proposées par divers auteurs [16], [17], [18], [19]. On a choisi une solution simple et facile du point de vue manipulation, qui néanmoins assure un bon contact (épaisseur de la lame d'air dans la région utilisée : environ  $0,3 \mu$ ). Cette solution consistait dans l'emploi d'une presse pneumatique (fig. 9), et permet l'utilisation de films de fabrication courante. L'étude du contact dans une telle presse a été étudiée, par M<sup>lle</sup> J. Gauthier du Marache [20].

2° Le dépouillement de l'autoradiographie se fait à l'aide d'un microdensitomètre (Vassy, Chalonge, etc.). Dans la plupart des cas, la densité varie principale-

ment suivant une direction, on peut donc utiliser des fentes rectangulaires, dont la hauteur n'a pas beaucoup d'importance.

On a intérêt à diminuer autant que possible la largeur de la fente. Par exemple, avec le densitomètre Vassy, on peut opérer avec une fente de  $5\mu$  de large et  $750\mu$  de hauteur.

Il faut alors que les grains de l'émulsion soient assez petits et réguliers pour qu'avec des fentes fines, les fluctuations statistiques ne soient pas trop importantes.

La figure 8 montre que dans le cas extrême considéré (discontinuité brutale de la densité de neutrons passant d'une valeur finie à une valeur nulle) la densité de noircissement est déjà tombée à  $1/10^e$  de sa valeur à une distance de l'arête du détecteur égale à  $150\mu$  lorsqu'on utilise un détecteur de  $10\mu$  d'épaisseur.

En conclusion, on peut dire que la méthode d'autoradiographie de détecteurs possède un très bon pouvoir de résolution et, en même temps, des

qualités de précision et simplicité, étant bien entendu qu'elle s'applique aux mesures en valeur relative.

En vue de vérifier la méthode, nous l'avons appliquée à un problème calculable; répartition de la densité de neutrons dans un bloc de paraffine d'épaisseur grande, les neutrons arrivant perpendiculairement à la face d'entrée [12]. On constate un accord très satisfaisant entre le calcul et l'expérience (erreur estimée  $\pm 2$  pour 100). Cette expérience fera l'objet d'une publication ultérieure.

**Remerciements.** — Nous remercions tout particulièrement M. Magnan, qui a bien voulu nous permettre d'utiliser son appareillage d'évaporation sous vide, ainsi que MM. Barbeau et Quevron, qui ont mis aimablement à notre disposition leurs microdensitomètres.

Une partie des mesures a été effectuée par M. F. Tenot, Agent technique.

Manuscrit reçu le 24 novembre 1952.

#### BIBLIOGRAPHIE.

- [1] YAGODA H. J. — *Radioactive Measurements with nuclear emulsions* (John Wiley and Sons, Inc. New-York, 1949, chap. X, p. 217).
- [2] TAMMANN G. et BAUDEL G. — *Z. Metallkunde*, 1933, **25**, 153-156 et 207-209.
- [3] U. S. A. E. C. — *Fourth semi-annual report*, 1948, p. 114-119.
- [4] KOHN A. — *Rev. Metal.*, 1951, **48**, 219-231.
- [5] GATOS H. C. et AZZAM A. — *J. Metals*, avril 1952, p. 407.
- [6] GOODMAN C. et PICTON B. C. — *Phys. Rev.*, 1941, **60**, 688.
- [7] GOODMAN C. et THOMPSON C. R. — *Am. Mineralog.*, 1943, **28**, 456-467.
- [8] COPPENS M. R. — *Étude de la réactivité de quelques roches par l'émulsion photographique. Thèse*, Paris (Masson, Paris, 1949).
- [9] BOYD G. A. et WILLIAMS A. I. — *Proc. Soc. Exp. Biol. Med.*, 1948, **69**, 225-232.
- [10] BOYD G. A. et BOARD F. A. — *Science*, 1949, **110**, 586-588.
- [11] HERTZ H. — *Med. Radiogr. Photogr.*, 1950, **26**, n° 2, 46-51 et 89.
- [12] ERTAUD A. et ZALESKI P. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **234**, 1969-1971.
- [13] BLAU M., RUDERMAN I. W. et CZECHOWSKI Y. — *Rev. Sc. Instr.*, 1950, **21**, 232.
- [14] OKRENT D. et SALOMON A. K. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 826.
- [15] SILBERSTEIN L. — *J. Frankl. Inst.*, 1951, **251**, 3.
- [16] GONBERG H. J. — *Nucleonics*, 1951, **9**, 4 et 28.
- [17] EVANS T. C. — *Radiology*, 1947, **49**, 206.
- [18] BELANGER L. F. et LEBLOND C. P. — *Endocrinology*, 1946, **39**, 8.
- [19] PELC S. R. — *Nature*, 1947, **160**, 749.
- [20] GAULTIER DU MARACHE J. — *Sc. et Ind. fotogr.*, 2° série, 1951, **22**, 5.



## RÉPARTITION DE LA DENSITÉ DE NEUTRONS THERMIQUES DANS UN MILIEU DIFFUSEUR SEMI-INFINI IRRADIÉ PAR UN FLUX NORMAL A SA FACE

Par MM. J. BOURGEOIS, J. JACQUESSON et P. ZALESKI,

Commissariat à l'Énergie atomique, Fort de Châtillon.  
Service de la Pile de Châtillon.

**Sommaire.** — La répartition de la densité de neutrons thermiques a été étudiée dans le cas d'un flux perpendiculaire à la face plane d'un bloc de paraffine considéré comme semi-infini :

- 1° Étude expérimentale à l'aide de la méthode d'autoradiographie [1].
- 2° Étude théorique utilisant l'équation intégrale de la diffusion des neutrons sans changement d'énergie.

**Introduction.** — Nous avons utilisé la méthode de l'autoradiographie de détecteurs minces après irradiation [1] pour étudier la répartition de la dose de neutrons en fonction de la profondeur dans un bloc de paraffine épais lorsque les neutrons arrivent perpendiculairement à la face d'entrée du bloc.

L'étude de cette répartition a déjà fait l'objet de plusieurs publications [2], [3], [4], mais il était intéressant de préciser expérimentalement le flux dans la région de la paraffine très voisine de la face d'entrée, région dans laquelle le flux de neutrons varie très rapidement avec la profondeur et pour l'étude de laquelle, par conséquent, la méthode autoradiographique semble particulièrement indiquée. De plus, on peut trouver une solution mathématique relativement simple au problème de la répartition de la densité neutronique à l'intérieur d'un bloc de paraffine demi-infini, dans le cas d'un flux de neutrons monoénergétique arrivant perpendiculairement à la face d'entrée et ne subissant pas de changement d'énergie au cours des chocs successifs. L'expérience est réalisée de façon à se rapprocher le plus possible de ces conditions théoriques pour comparer les résultats expérimentaux et les résultats calculés.

**A. Détermination expérimentale de la répartition de densité.** — Les expériences ont été faites sur la pile de Châtillon.

Pour obtenir un flux de neutrons perpendiculaires à une face du bloc de paraffine, on a utilisé le canal n° 2 (1) gainé de cadmium à l'intérieur (fig. 1). On obtient de cette façon un flux canalisé sur une surface de  $9 \times 9$  cm.

On a opéré avec un parallélépipède rectangle de paraffine de  $60 \times 60 \times 30$  cm (fig. 2).

Dans ce parallélépipède, on a ménagé un évidement sous forme d'un parallélépipède rectangle de  $20 \times 20 \times 30$  cm. Pendant l'irradiation, on comble

cet évidement par un bouchon adapté, ou par des plaquettes de diverses épaisseurs qui donnent une épaisseur totale de 30 cm de la même paraffine

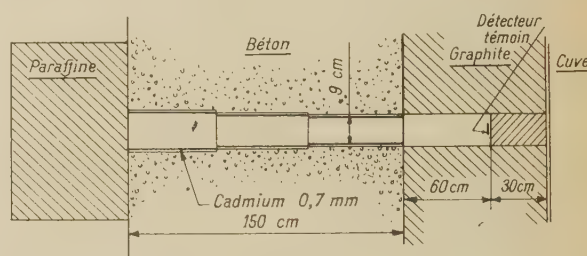


Fig. 1.

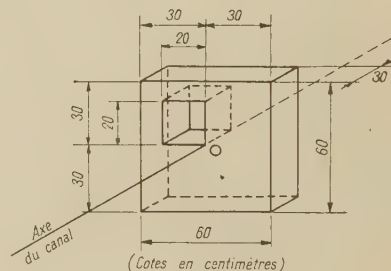


Fig. 2.

que le grand bloc. Le bloc de paraffine est recouvert par une feuille de cadmium de 0,7 mm d'épaisseur dans laquelle on a ménagé une fenêtre de  $9 \times 9$  cm, faisant face au canal, et centrée sur l'axe commun du canal et du bloc.

**Les mesures.** — On place au centre du bloc de paraffine et suivant une direction perpendiculaire à la face d'entrée, un détecteur en or, de  $2 \mu$  d'épaisseur. C'est un détecteur obtenu par évaporation sous vide sur un support de  $14/1000$  de millimètre de nitrate de cellulose (support de film Kodak).

La surface du détecteur est de  $2 \times 50$  mm. Le détecteur est irradié pendant 50 mn. Le temps de décroissance est de 1 h, et le temps d'exposition

(1) Pour une description de la pile de Châtillon, la disposition et le numérotage des canaux expérimentaux, voir les références [5] et [6].

de 100 h. Le film utilisé pour l'autoradiographie est le film Kodak n° 1357.

L'établissement et l'interprétation de l'autoradiographie se font suivant la méthode décrite par A. Ertaud et P. Zaleski [7].

On obtient de cette façon ce que nous appellerons « l'effet brut » (fig. 3, courbe en pointillé).

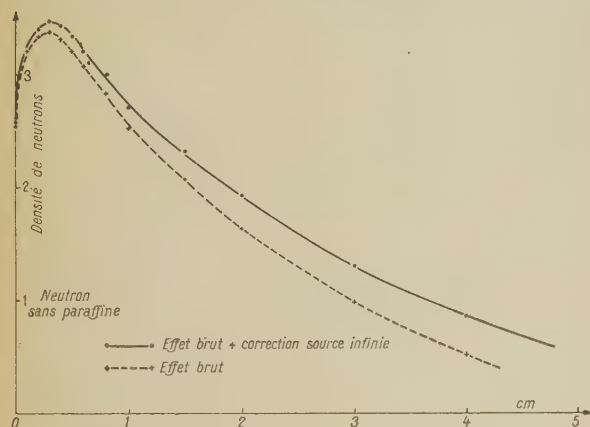


Fig. 3. — Effet des neutrons de la pile.

Abscisse : Profondeur dans le bloc de paraffine compté à partir de la face d'entrée.

Ordonnée : Densité de neutrons normalisée (1 correspondant à la densité en absence de paraffine).

Pour obtenir la courbe cherchée, il faut apporter certaines corrections à cet effet brut.

a. *Correction de sources.* — Le bloc de paraffine est assez grand pour que, tenant compte de la précision expérimentale, on puisse le considérer comme infini, étant bien entendu que la mesure se fait au centre du bloc suivant une direction perpendiculaire à la face d'entrée et sur une distance de 5 cm à partir de la face d'entrée.

Par contre, la surface de la source plane canalisée ( $9 \times 9$  cm) est nettement insuffisante pour qu'on puisse l'assimiler à une source infinie. Il faut donc faire une correction pour tenir compte de l'effet des neutrons qui devraient arriver sur les surfaces voisines de notre carré de  $9 \times 9$  cm. Pour déterminer cette correction, on fait des mesures analogues à la mesure de l'effet brut, sur des axes parallèles à l'axe du canal et à des distances variables de celui-ci suivant le schéma de la figure 4. Par exemple, l'activité mesurée sur l'axe A, perpendiculaire à la face d'entrée (la fenêtre  $9 \times 9$  cm étant toujours centrée sur O) est égale à celle qui s'ajouterait sur l'axe O à « l'effet brut », si l'on disposait, en plus, d'une source plane identique à la première et centrée sur A. On obtient ainsi par cet artifice, l'équivalent d'une source plane infinie.

Après pondération convenable, on exprime la correction en pourcentage par rapport aux valeurs de l'effet brut mesurées sur l'axe issu du point O,

et en fonction de la distance X à partir de la face d'entrée (fig. 5). Cette correction est appliquée à

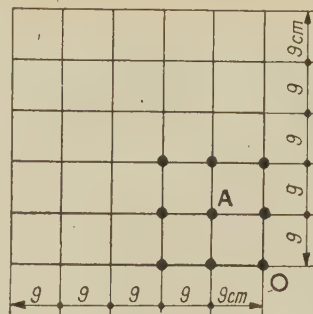


Fig. 4.

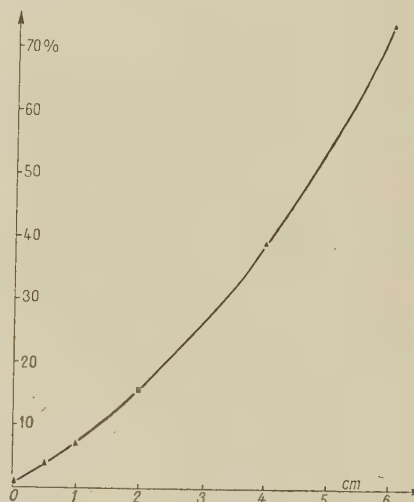


Fig. 5.

la courbe de « l'effet brut », on en déduit la courbe en trait plein de la figure 3.

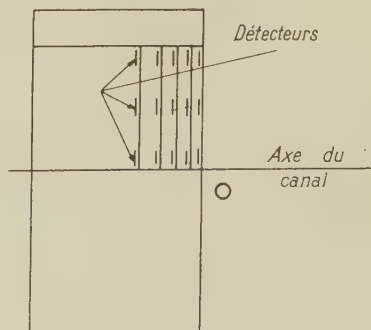


Fig. 6.

Pour effectuer cette mesure, on a utilisé des détecteurs de manganèse (alliage 90 pour 100 Mn, 10 pour 100 Ni)  $1,2 \times 1,2 \times 0,02$  cm, ces détecteurs



étant placés suivant les axes du schéma (fig. 4) et entre des plaquettes de paraffine qui remplissent l'évidement (fig. 6).

Les courbes ainsi relevées sont tracées par points, mais la précision est suffisante étant donné que la correction, comme on le voit d'après les résultats expérimentaux, est très faible pour la région intéressante de la courbe (premier centimètre à partir de la face d'entrée).

On s'est limité aux deux couronnes des carrés ( $9 \times 9$  cm) correspondant aux points renforcés sur la figure 4, étant donné que la contribution des carrés plus éloignés était inférieure à la précision de l'expérience.

**b. Correction de neutrons rapides.** — On opère avec des neutrons qui ne sont pas parfaitement ralentis. Pour se rapprocher au mieux de la distribution des neutrons thermiques, on soustrait de l'effet brut, l'effet des neutrons épicadmiques (l'expérience est réalisée en recouvrant la fenêtre d'entrée par une feuille de cadmium de 0,7 mm d'épaisseur). Comme cet effet est faible, il est nécessaire de remplacer le détecteur d'or de  $2 \mu$  d'épaisseur par un détecteur d'or laminé plus épais (environ  $30 \mu$  d'épaisseur).

Cette méthode présente deux inconvénients :

le détecteur épais crée une plus grande perturbation dans la distribution des neutrons à mesurer ;

le pouvoir de résolution est moins bon qu'avec un détecteur mince.

Toutefois, ces inconvénients ne sont pas graves étant donné que les courbes de densité des neutrons rapides sont beaucoup plus plates que celles de l'effet brut, et surtout parce que cette mesure ne concerne qu'un terme correctif faible par rapport à l'effet brut. La liaison de ces mesures avec celles de l'effet

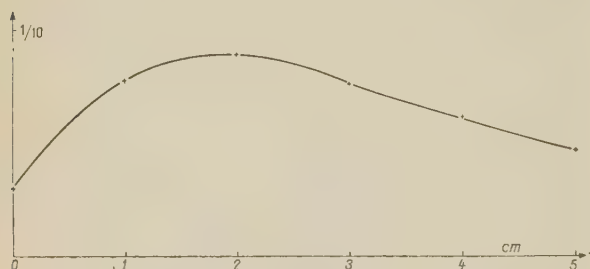


Fig. 7. — Effet des neutrons au-dessus du cadmium.  
Abscisse : Profondeur dans le bloc de paraffine  
compté à partir de la face d'entrée.  
Ordonnée : Densité de neutrons normalisée  
(1 correspondant à la densité en absence de paraffine).

brut est donnée par l'irradiation dans chaque cas de détecteurs témoins en or (détecteurs placés au bout de la brique de graphite enfermée dans le canal) (fig. 1). Le résultat est donné sur la figure 7.

En plus des deux corrections citées ci-dessus, Il y a lieu d'interpréter les résultats au voisinage

de discontinuités très brusques (point O et maximum). Les corrections à appliquer résultent de la méthode d'autoradiographie.

On peut remarquer que tant que la dérivée de la

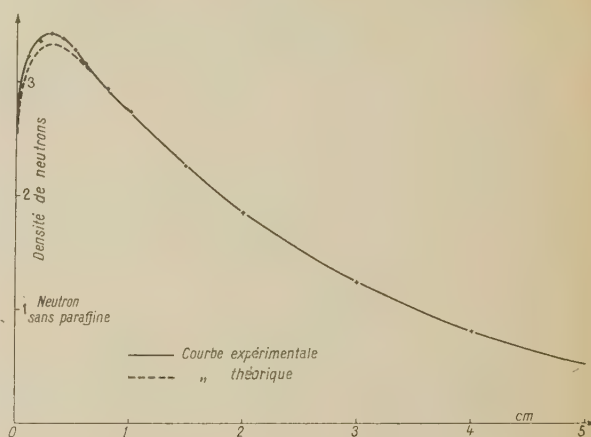


Fig. 8.

densité ne varie pas trop brusquement, elles sont négligeables. Dans le cas présent, elles sont sensibles sur une longueur d'environ 0,1 mm à partir de O et sur une longueur de 0,1 mm autour du maximum <sup>(2)</sup>. Après avoir apporté toutes ces corrections à l'effet brut (fig. 3), on obtient la courbe expérimentale définitive (fig. 8, courbe en trait plein).

**B. Détermination théorique de la répartition de la densité.** — La densité de choc  $\varphi(x)$  au point  $x$ , est donnée par l'équation intégrale

$$\varphi(x) = \Sigma' e^{-\Sigma_{tr}x} + \frac{\Sigma_{tr}}{2} \int_0^\infty \varphi(y) E_1(\Sigma|x-y|) dy. \quad (1)$$

Le premier terme du deuxième membre représente la source répartie fournie par le premier choc du neutron incident.

Le deuxième terme représente la contribution de tous les chocs à partir du deuxième inclusivement <sup>(3)</sup>.  $\Sigma$  est la section efficace macroscopique en  $\text{cm}^{-1}$  :

$$\Sigma = \Sigma_{tr} + \Sigma_a;$$

<sup>(2)</sup> De plus, il y aurait à considérer le fait que dans le schéma parfait, la densité des neutrons qui n'ont pas subi de choc et qui agissent sur le détecteur, suit la loi  $e^{-\Sigma_{or}x}$  au lieu de  $e^{-\Sigma_{par}x}$ , ou  $\Sigma_{or}$  et  $\Sigma_{par}$  représentent respectivement les sections efficaces macroscopiques totales de l'or et de la paraffine.

En pratique (les neutrons n'étant pas rigoureusement canalisés et le détecteur étant très mince) on peut négliger la correction qui en résulterait (on remarquera d'ailleurs que cette correction de toute façon serait faible).

<sup>(3)</sup> La fonction  $E_1$  figurant sous le signe somme est définie comme suit :

$$E_1(u) = -E_1(-u) \int_u^\infty \frac{e^{-t}}{t} dt.$$

$\Sigma_{tr}$ , section efficace macroscopique de transport;  
 $\Sigma_a$ , section efficace macroscopique de capture;  
 $\Sigma'$ , est la section efficace fictive choisie comme nous le verrons plus loin, pour tenir compte de l'anisotropie du premier choc.

1° *Résolution de l'équation (1).* — a. On cherche d'abord la solution asymptotique sous la forme  $Ae^{-\alpha x}$ .

En portant cette valeur dans l'intégrale du deuxième membre, on trouve

$$\begin{aligned} & \frac{\Sigma_{tr}}{2} \int_0^\infty A e^{-\alpha y} E_1(\Sigma |x-y|) dy \\ &= A \frac{\Sigma_{tr}}{2\alpha} [E_1(\Sigma x) - e^{-\alpha x} E_1(\Sigma - \alpha)x] \\ &+ \frac{A \Sigma_{tr}}{2\alpha} e^{-\alpha x} L \frac{\Sigma + \alpha}{\Sigma - \alpha}. \end{aligned}$$

Pour  $x \rightarrow \infty$  cette expression se réduit à

$$\frac{A \Sigma_{tr}}{2\alpha} e^{-\alpha x} L \frac{\Sigma + \alpha}{\Sigma - \alpha}$$

qui doit être identique à  $Ae^{-\alpha x}$ , d'où la condition qui détermine  $\alpha$  (4)

$$\frac{1}{\alpha} L \frac{\Sigma + \alpha}{\Sigma - \alpha} = \frac{2}{\Sigma_{tr}}.$$

b. Connaissant  $\alpha$ , exposant de la solution asymptotique, on cherche une solution approchée sous forme d'une somme d'exponentielles :

$$f(x) = A e^{-\alpha x} + B e^{-\Sigma' x} + C e^{-\gamma x}, \quad (2)$$

Nous disposons de quatre paramètres  $A, B, C, \gamma$ , ce qui permet de satisfaire l'équation (1) pour quatre points arbitrairement choisis (0,1, 0,2, 0,3 et 0,4 cm).

Nous avons en effet un système de quatre équations à quatre inconnues, obtenues en explicitant l'équation (1), dont le terme sous le signe  $\int$  s'intègre dans le cas envisagé de solutions exponentielles. Ce système peut être résolu par approximations successives.

La solution rigoureuse étant  $\varphi(x)$ , on a

$$\varphi(x) = \Sigma' e^{-\Sigma' x} + \frac{\Sigma_{tr}}{2} \int \varphi(y) E_1 dy, \quad (3)$$

avec l'approximation  $f(x)$ , on obtient

$$f(x) + G(x) = \Sigma' e^{-\Sigma' x} + \frac{\Sigma_{tr}}{2} \int f(y) E_1 dy, \quad (4)$$

(4) Cette condition est identique à la condition classique [8] :

$$\frac{\arg \tanh \mu}{\mu} = \frac{1}{1-f},$$

où  $\mu$  correspond à  $\alpha$  avec nos notations et

$$1-f = \frac{\sigma_s}{\sigma_{tr}}.$$

$\sigma_s$  et  $\sigma_{tr}$  étant les sections efficaces microscopiques de diffusion et de transport.

$G(x)$  s'annulant pour les quatre valeurs choisies. Soustrayant (4) de (3), il vient

$$\varphi(x) - f(x) = G(x) + \frac{\Sigma_{tr}}{2} \int (\varphi(y) - f(y)) E_1 dy.$$

La correction  $f_1(x)$  à ajouter à  $f(x)$  est donc donnée par l'équation intégrale

$$f_1(x) = G(x) + \frac{\Sigma_{tr}}{2} \int f_1(y) E_1 dy. \quad (5)$$

On cherche une solution de la forme

$$f_1(x) = A' e^{-\alpha x} + B' e^{-\beta' x}.$$

On dispose ainsi de trois paramètres arbitraires  $A', B', \beta'$ , qui permettent de satisfaire (5) pour les trois points

$$x = 0, \quad x = 0,05, \quad x = 0,1 \text{ cm.}$$

On obtient finalement pour valeur approchée de  $\varphi(x)$  :

$$\begin{aligned} \varphi(x) \simeq f(x) + f_1(x) &= (A + A') e^{-\alpha x} \\ &+ B e^{-\Sigma' x} + C e^{-\gamma x} + B' e^{-\beta' x}. \end{aligned}$$

2° *Calculs numériques.* — En prenant les valeurs données par C. W. Tittle [9]

$$\Sigma = \Sigma_{tr} + \Sigma_a = 2,554 \text{ cm}^{-1},$$

$$\Sigma_{tr} = 2,532 \text{ cm}^{-1},$$

$$\Sigma' = 3,055 \text{ cm}^{-1},$$

la relation (2) donne

$$\alpha = 0,4087$$

et on obtient finalement

$$\begin{aligned} \varphi(x) &= 10,744 e^{-0,4087 x} - 1,815 e^{-3,055 x} \\ &- 1,470 e^{-0,0 x} - 0,390 e^{-4,0 x}. \end{aligned}$$

3° *Choix de  $\Sigma'$ .* — On a choisi pour le terme source une valeur  $\Sigma'$  de la section efficace d'après les considérations exposées ci-dessous.

On désire tenir compte de l'anisotropie du premier choc (qui représente le terme source figurant dans l'équation intégrale). Après le premier choc, on suppose valable le schéma du transport, c'est-à-dire : diffusion isotrope avec une section efficace fictive  $\Sigma_{tr}$ .

Le premier choc est régi en réalité par la section de diffusion  $\Sigma_s$ . On détermine  $\Sigma'$  de manière à ce que la distribution isotrope fictive résultant de cette valeur soit identique à la distribution anisotrope réelle résultant de  $\Sigma_s$  et pour cela, on exprime que la position moyenne du deuxième choc est la même dans l'un et l'autre cas.

Dans le cas du premier choc réel anisotrope, la position moyenne du deuxième choc, comptée à partir de la face d'entrée, est

$$\lambda_s + \lambda_s \mu = \lambda_s (1 + \mu),$$

$\mu$  étant le cosinus moyen de l'angle de diffusion.



Dans le cas du premier choc fictif isotrope, la position moyenne du deuxième choc est

$$\lambda' = \frac{1}{\Sigma'}.$$

En écrivant que ces positions moyennes sont confondues, on obtient la relation fixant  $\Sigma'$  :

$$\lambda' = \frac{1}{\Sigma'} = \lambda_s(1 + \mu).$$

d'où

$$\Sigma' = \frac{\Sigma_s}{1 + \mu},$$

or,

$$\mu = 1 - \frac{\Sigma_{tr}}{\Sigma_s} = 1 - \frac{2,532}{4,32} = 0,414,$$

$$\Sigma' = \frac{4,32}{1,414} = 3,055 \text{ cm}^{-1} \quad (^5).$$

4° *Passage de la densité de choc à la densité vraie.* — La densité vraie  $n$  est reliée à la densité de choc  $\varphi$  par la relation

$$n = \frac{\varphi}{\Sigma},$$

en fait, nous avons utilisé deux valeurs pour la section efficace :

$\Sigma'$  pour le premier choc;

$\Sigma$  pour les chocs suivants.

Nous décomposons donc  $\varphi$  en deux termes

$$\varphi = \Sigma' e^{-\Sigma'x} + \varphi_2.$$

Le premier terme correspond au premier choc, le deuxième terme correspond aux chocs suivants :

$$n = \frac{\Sigma' e^{-\Sigma'x}}{\Sigma'} + \frac{\varphi_2}{\Sigma} = e^{-\Sigma'x} + \frac{\varphi_2}{\Sigma}.$$

(5) La détermination de  $\Sigma$  nécessite la connaissance de la section efficace  $\Sigma_s$  que l'on confond étant donné la faible valeur de  $\Sigma_a$  avec la section efficace totale

$$\Sigma_{\text{tot}} = \Sigma_s + \Sigma_a.$$

Le spectre de neutrons utilisé étant complexe, on a procédé à une détermination expérimentale de cette section efficace. Dans ce but, on opère sur un flux de neutrons identiques à celui employé plus haut, mais étroitement canalisé de façon à se trouver en bonne géométrie. La valeur trouvée, pour le spectre de neutrons et pour la paraffine utilisés, est

$$\Sigma_{\text{tot}} = 4,32 \pm 0,1 \text{ cm}^{-1}.$$

La courbe ainsi obtenue est tracée sur la figure 8, en traits pointillés (6).

**Conclusion.** — Cette expérience nous permet d'obtenir la courbe de répartition de densité d'une manière continue et avec une bonne précision relative (erreur estimée  $\pm 2$  pour 100).

L'expérience décrite constitue un progrès certain sur les méthodes classiques (détecteurs comptés à l'aide de compteurs Geiger-Müller) (7).

La méthode d'autoradiographie s'avère comme un outil particulièrement adapté aux études concernant les effets biologiques des neutrons. La mesure de la densité de neutrons dans un « fantôme » permettra en effet de calculer la dose (exprimée en r.e.p.) reçue en profondeur, dose qui est due particulièrement aux réactions  $(n, p)$  sur l'azote et  $(n, \gamma)$  sur l'hydrogène des tissus vivants. On en déduira l'irradiation tolérable en neutrons thermiques (8).

Ce travail a été fait sous la direction de M. André Ertaud, Chef du Service de la pile de Châtillon, que nous tenons à remercier pour ses fructueux conseils. Nous remercions aussi M<sup>lle</sup> Denise Roy qui a mis au point et appliqué la méthode de calcul de  $f(x)$  et  $f_1(x)$  comportant la résolution par approximations successives des systèmes d'équation simultanées à quatre et trois inconnues.

Les manipulations ont été faites avec le concours de M. Redon, Agent technique et de M. Bocquet, Stagiaire.

Manuscrit reçu le 11 décembre 1952.

(6) Une méthode de calcul différente a été mise au point par M. Yvon et appliquée au problème précédent par M<sup>lle</sup> Besset. Dans cette méthode, on utilise l'équation de transport où chaque choc est considéré comme anisotrope.

Cette équation est résolue après le développement en polynômes de Legendre définis sur la demi-sphère par la méthode dite de la double face et qui permet d'introduire aisément les conditions aux limites. En utilisant la section efficace totale déterminée expérimentalement, cette méthode conduit pour  $\Sigma_a$  et  $\mu$  aux valeurs ci-dessous :

$$\Sigma_a = 0,026 \text{ cm}^{-1}, \quad \mu = 0,46$$

qui sont en accord acceptable avec les valeurs que nous avons utilisées.

(7) Voir à ce sujet, A. ERTAUD et P. ZALESKI, *loc. cit.*

(8) Par exemple : en appliquant une méthode analogue à celle utilisée par B. S. SMITH et J. H. TAIT, *loc. cit.*

## BIBLIOGRAPHIE.

- [1] ERTAUD A. et ZALESKI P. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **234**, 1969.
- [2] CAPRON P. — *Bull. Acad. Roy. Belg. Cl. Sc.*, décembre 1948.
- [3] CAPRON P. FAES M. et TAVERNIER G. C. — *Nature*, 1949, **163**, 129.
- [4] SMITH B. S. et TAIT J. H. — *Nature*, 1950, **165**, 196.
- [5] KOWARSKI L. — *J. Physique Rad.*, 1951, **12**, 751-755.
- [6] ERTAUD A. et BEAUGE R. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 10A-13A.
- [7] ERTAUD A. et ZALESKI P. — *J. Physique Rad.*
- [8] MARSHAK R. E., BROOKS H. et HURWITZ Jr J. — *Nucleonics*, mai, 1949, 15.
- [9] TITTLE C. W. — *Phys. Rev.*, 1950, **80**, 756.

## EXPOSÉS ET MISES AU POINT BIBLIOGRAPHIQUES

## SPECTRE HERTZIEN ET STRUCTURE DES SOLIDES :

## I. ABSORPTION DEBYE DES SOLIDES DANS LE SPECTRE HERTZIEN ET DÉFAUTS DE RÉSEAUX.

Par M<sup>me</sup> MARIE FREYMANN et M. RENÉ FREYMANN,

Faculté des Sciences de Rennes.

**Sommaire.** — Dans la première partie de ce travail, après avoir sommairement rappelé les techniques utilisées, les auteurs précisent un fait fondamental : la théorie de Debye primitive invoquait l'existence de dipôles liés à l'orientation de molécules ou de groupements d'atomes. Il convient désormais de faire intervenir un deuxième type de dipôle : les dipôles liés aux défauts du réseau cristallin. Ce point de vue résulte des travaux expérimentaux et théoriques de Breckenridge [7] sur les halogénures et de nos travaux sur les oxydes [14], [17], [19], [20], [22], [26]. Cela permet de montrer que l'absorption hertzienne constitue un nouveau et excellent moyen d'étude des défauts dans la structure des réseaux cristallins (parallèlement aux méthodes spectrales usuelles, aux techniques de conductibilité, de diffusion, etc.). On peut prévoir des applications pratiques de cette spectroscopie hertzienne des solides.

Dans la deuxième partie, nous indiquerons les résultats préliminaires obtenus par spectroscopie hertzienne sur le problème de l'eau libre et de l'eau liée et sur le problème connexe de l'adsorption par les solides.

Des articles ultérieurs traiteront de façon détaillée de l'étude hertzienne des solides présentant des défauts de réseau, complétant ainsi le présent Mémoire.

L'application des ondes hertziennes à l'étude des molécules et atomes fut longtemps limitée à la détermination de moments électriques, pour une longueur d'onde donnée. On en a, certes, tiré d'utiles renseignements sur la structure des molécules, mais on pouvait attendre mieux de l'étude de l'ensemble du spectre hertzien. Cette étude a été abordée, il y a une vingtaine d'années [1], [23], [31], [32], [35], mais c'est surtout depuis 1945 que la question a pris une réelle extension. Nous n'exposerons pas ici l'ensemble de ce problème; nous renvoyons à divers exposés [21], [23], [27], [29] et au tableau page 205 qui donne un résumé permettant de placer dans un cadre général le problème particulier examiné ici.

Dans ce qui suit, nous laisserons de côté l'étude des solides par les précieuses méthodes de résonance nucléaire et électronique (voir [27], [73]); par ailleurs, nous nous attacherons plus particulièrement aux méthodes d'étude, non pas de la molécule isolée, mais des molécules considérées en groupe par leur absorption dans l'ensemble du spectre hertzien <sup>(1)</sup>. Nous essaierons de montrer que cette nouvelle spectroscopie hertzienne des solides complète la spectroscopie infrarouge, visible, ultraviolette des solides (comme la spectroscopie hertzienne

complète la spectroscopie optique des vapeurs) : Étude indirecte des bandes d'énergie très rapprochées dans les solides par la détermination de l'énergie d'activation de diffusion des défauts.

Nous nous proposons de rassembler en plusieurs articles les résultats obtenus depuis 2 ans, dans ce domaine, à la Faculté des Sciences de Rennes. Ces résultats constituent donc la mise au point d'un effort collectif de mesures et de réalisation d'appareils, par M. Jean Le Bot, Chef de travaux, MM. Le Montagner, Meinel, Mével, M<sup>me</sup> Rolland-Bernard, Assistants, sans oublier MM. R. Bernard, Daniel, Hélaine, Jeudon, M<sup>lle</sup> S. Langevin, MM. Létienne, Prigent, Tiennot. Nous tenons à souligner aussi l'efficacité de notre constante et précieuse collaboration avec M. R. Rohmer, Professeur de Chimie Minérale à la Faculté des Sciences de Rennes. C'est également par les réalisations radioélectriques de M. Duval et les constructions mécaniques de M. Giquelais que les appareils de mesure ont pu être mis au point; nous leur exprimons ici nos très vifs remerciements pour leur exceptionnel dévouement.

Si des résultats ont pu être obtenus par ces chercheurs, c'est grâce aux efforts matériels importants qui ont été faits en faveur du Laboratoire de Physique de la Faculté des Sciences de Rennes. Nous sommes heureux de pouvoir dire ici notre reconnaissance à M. Donzelot, Directeur de l'Enseignement Supé-

<sup>(1)</sup> Il convient, en effet, de distinguer deux problèmes :

1° L'étude de la molécule isolée, aussi isolée que possible, par exemple, grâce à l'étude des vapeurs sous très faible pression; on peut ainsi examiner la molécule en elle-même, sans interaction des molécules voisines (d'où la détermination des distances interatomiques, des angles de valence, etc.).

2° L'étude des molécules, atomes ou ions perturbés par l'influence de leurs voisins. Cette « méthode des perturbations » [24] rassemble d'ailleurs un grand nombre de phénomènes différents qui correspondent aux diverses formes d'interaction, depuis les faibles forces de Van der Waals jusqu'aux forces de cohésion entre atomes métalliques ou ions.

En ce qui concerne les forces de Van der Waals-London, quelques expériences préliminaires ont déjà été faites par les auteurs anglo-saxons : Étude des gaz (et mélanges de gaz) à diverses pressions. Mais il reste encore à étudier notamment le passage liquide-vapeur de façon analogue à ce que fit, par exemple, Naheriac ([24], p. 31) pour l'absorption des alcools dans le proche infrarouge.



rieur et à M. Dupouy, Directeur du Centre National de la Recherche Scientifique. Nous ne saurions oublier le Comité Scientifique de l'UNESCO qui fit don de précieux appareils à notre Laboratoire sinistré en 1944.

Nous remercions également MM. les Professeurs Frohlich (Liverpool), et E. Bauer (Paris) de fructueuses discussions.

Nous nous attacherons, dans ces articles, au problème de l'étude des solides par l'examen de leurs propriétés diélectriques. Nous indiquerons tout d'abord les techniques utilisées. Il est curieux de constater qu'à quelques exceptions près (travaux de Smyth [71], de Guillien [32] à [35]) les recherches spectrales portèrent et portent souvent encore aujourd'hui, uniquement sur les liquides, en vue de la vérification de la théorie de l'orientation dipolaire de Debye. Il nous a paru indispensable d'entreprendre, comme nous l'avions fait dans les domaines ultraviolet, visible et infra-rouge <sup>(2)</sup> une étude systématique des solides : mesure de la constante diélectrique  $\epsilon'$  et de l'absorption  $\epsilon''$  de divers solides de structure cristalline et électronique différentes, en fonction de la température et de la fréquence (des ondes kilométriques aux ondes millimétriques). Nous indiquerons tout d'abord les montages employés pour cette étude des solides. Puis, dans la première partie de ce travail, nous nous proposons de revenir sur les bases mêmes de la théorie utilisée pour expliquer les phénomènes diélectriques; sans modifier la théorie de Debye, nous voulons souligner un point fondamental qui semble avoir échappé à la plupart des auteurs qui ont étudié ces questions : l'existence de deux types distincts de dipôles : 1° Les dipôles formés par des molécules ou groupement d'atomes; 2° Les dipôles liés à l'existence de défauts dans le réseau cristallin. Ceci nous conduira à anticiper sur les données expérimentales qui suivront dans de prochains articles mais il nous a paru utile de placer cette mise au point dès le début.

Nous examinerons ensuite diverses questions qui n'avaient fait jusqu'ici que l'objet de brèves Communications [notamment aux Congrès d'Amsterdam (1950), Bâle (1951), Liverpool (1951), Paris (février 1952 et juin 1952)] : Dans le chapitre II, nous essaierons de montrer quels précieux renseignements peut apporter le spectre hertzien sur le problème de l'eau libre et de l'eau liée et, sous une forme plus générale, sur la question de l'adsorption par les solides : c'est là pour le chimiste comme pour le biologiste, un nouveau procédé d'étude de ces phénomènes. Nous n'avons d'ailleurs d'autre but que d'apporter des données préliminaires sur les phénomènes que nous avons mis en évidence, en soulignant la nécessité de développer ces données pour de nombreux solides, de nombreux corps adsorbés, pour diverses températures et diverses fréquences.

Dans des publications ultérieures, nous nous proposons d'indiquer l'apport de la spectroscopie hertzienne en ce qui concerne les composés non stœchiométriques et le problème des semi-conducteurs.

Il y a là un nouveau procédé d'étude de ce type de solides et nous soulignerons alors à nouveau que la théorie de l'orientation des molécules ou de groupements d'atomes ne saurait être retenue seule : pour les semi-conducteurs, l'introduction de la notion de défaut du réseau est indispensable pour expliquer les effets observés. Nous verrons que ces résultats ont été la première conclusion de recherches sur les oxydes d'uranium effectuées en collaboration avec le Commissariat à l'Énergie atomique et étendues ensuite aux oxydes de zinc, fer, etc.

Des recherches sur les aluns et sels d'ammonium ont été également poursuivies [16], [22], [26].

### Techniques utilisées.

La figure I.3 (qui résume le mieux nos divers résultats) permettra de bien comprendre les problèmes techniques qui se posaient : mesurer pour diverses substances solides (ou solidifiées par fusion) l'absorption  $\epsilon''$  et la constante diélectrique  $\epsilon'$ , pour une gamme de température allant des plus basses jusqu'aux plus élevées possibles et pour une gamme spectrale s'étendant des ondes kilométriques jusqu'aux ondes millimétriques.

Il convenait donc de mettre au point les montages de mesure (très différents) des divers domaines : 1° Ondes kilométriques et hectométriques; 2° Ondes décimétriques, métriques et décimétriques; 3° Ondes centimétriques et millimétriques <sup>(3)</sup>. Les dispositifs d'étude de la deuxième région n'ont pas encore été mis au point à Rennes et c'est pourquoi nous ne parlerons ici que de la première et de la troisième, très brièvement d'ailleurs, car nous renvoyons aux articles d'ensemble sur la question [21], [30] et aux publications ultérieures des chercheurs de Rennes qui ont mis au point ces montages.

**1. Mesures en ondes kilométriques et hectométriques.** — Les montages de ponts correspondants sont classiques [30]. Précisons seulement que Meinell [57], puis M<sup>lle</sup> Rolland et R. Bernard [6], [62], [63] ont contribué à la mise au point de deux ponts de Sauty parallèle permettant d'explorer la gamme 0,1-1000 kHz environ. Les mesures sont faites à l'aide d'un générateur basse fréquence ou haute fréquence, pont et oscilloscope; selon une méthode analogue à celle de Guillien [32], on emploie un condensateur cylindrique rempli de la poudre étudiée, placé dans une enceinte de verre plongée dans un Dewar rempli d'air liquide; on peut ainsi faire des mesures de — 180 à + 100° C

<sup>(3)</sup> Nous avons proposé précédemment [21], [23], pour désigner respectivement ces trois domaines, les expressions infrahertzien, hertzien et ultrahertzien, par analogie avec infrarouge et ultraviolet, infrason et ultrason, compte tenu du fait que la découverte de Hertz fut faite en ondes métriques. Mais, étant donné la variété des termes usités (hyperfréquences, microondes, microhertzien, ultrahaute fréquence, ultrahertzien), nous nous rangeons malgré tout, ici, à l'avis exprimé au Colloque du C. N. R. S. de février 1952, à Paris, « Utiliser la nomenclature décimale, kilométriques, hectométriques, décimétriques, métriques, décimétriques, centimétriques, millimétriques. » Nous souhaitons que cette nomenclature se généralise dans les pays de langue française. »

<sup>(2)</sup> M<sup>me</sup> T. GUILMART et R. FREYMANN. *Rev. Opt.*, 1938, 17, 199; M<sup>me</sup> M. et R. FREYMANN. *C. R. Acad. Sc.*, 1940, 211, 78; J. LECOMTE et R. FREYMANN. *C. R. Acad. Sc.*, 1939, 208, 1401 et *Bull. Soc. Chim.*, 1941, 8, 601.

LES MOLECULES. LES ATOMES. LES IONS.	LA MOLECULE.			L'ATOME.				Le noyau.
	Effet dipolaire électrique.		Effet dipolaire magnétique.	L'électron.		Les électrons.	Absorption par résonance paramagnétique nucléaire	
	Absorption par rotation	Absorption par inversion		Absorption de l'hydrogène excité	Absorption par résonance paramagnétique électronique			
Origine.....	Absorption par rotation dipolaire	Absorption par inversion	Absorption dipolaire magnétique	Absorption de l'hydrogène excité	Absorption par résonance paramagnétique électronique	Absorption par résonance paramagnétique nucléaire	Absorption par résonance paramagnétique nucléaire	Absorption par résonance paramagnétique nucléaire
Exemple.....	H <sub>2</sub> O, ZnO	ICl	NH <sub>3</sub>	H	Alans	Fe	NH <sub>4</sub> Cl	CH <sub>3</sub> CH=CHCl
Autres de la découverte..	Debye (1910)	Blaney, Good, Townes (1946)	Dennison, Cleaton, Williams (1934)	Lamb, Retherford (1947)	Zavoisky (1946)	Griffiths (1946)	Rabi (1938)	Kopfermann (1949)
Nombres quantiques.....	-	JK	JK	nl	nljm	nljm	nljmi	nljmi
Structure fine.....	Bandes larges, pas de structure fine	JK	JK	nl	nljm	nljm	nljmi	nljmi
Structure hyperfine.....	-	JK	JK	nl	nljm	nljm	nljmi	nljmi
Domaine.....	km à m	cm à mm	mm	cm	cm	cm	hm, dm, cm	hm, dm, cm
Etat de la substance.....	Solide, liquide	Vapeur	Vapeur	Gaz excité	Solide,	Solide,	Vapeur (Rabi)	Solide, liquide (Bloch, Purcell)



environ. Nous signalerons seulement la difficulté des mesures au-dessous de 200 Hz et la difficulté de donner, pour les poudres, la valeur absolue de la constante diélectrique et de l'absorption [6 bis], [40], [41]. Rappelons enfin, la mise au point par Létienne [53] d'un type de générateur haute fréquence donnant une *fréquence remarquablement stable*.

**2. Mesures en ondes centimétriques.** — Comme nous ne traiterons pas ici l'étude par le spectre hertzien, de la molécule isolée, nous nous contenterons de rappeler, que Le Bot et Le Montagner ont réalisé des appareils d'étude des vapeurs à 3 et 1,25 cm de longueur d'onde.

Pour l'étude des solides (ou liquides solidifiés), nous avons utilisé la méthode de Benoit et Roberts-Von Hippel employant un guide d'ondes court-circuité à son extrémité (la substance étudiée étant placée contre le court-circuit). Le principe de ce montage a été donné précédemment [21]; sa réalisation pour 10 cm a été décrite par Le Bot [51]. La même méthode a été étendue ensuite à la gamme 4-3 cm (deux appareils distincts), puis à la gamme 1,25 cm. Nous ne décrirons pas ici ces appareils, mais soulignerons ci-après les perfectionnements apportés à Rennes.

A. CALCUL DE  $\epsilon'$  et  $\epsilon''$ . — Une fois déterminés le déplacement  $p$  de la sonde et la largeur  $q$  à deux fois le minimum, le calcul de  $\epsilon'$  et  $\epsilon''$  est assez long. Sa durée a pu être réduite par Le Montagner et Le Bot qui ont donné [54] un nouvel abaque particulièrement commode de la fonction

$$R e^{j \arctg T} = \frac{\text{th}(x + jy)}{x + jy},$$

ainsi que divers détails pratiques de calcul.

En vue de l'utilisation des résultats donnés dans les chapitres suivants ( $\lambda = 3$  cm), on ne perdra pas de vue que, par cette méthode, il nous était tout d'abord difficile de distinguer  $\epsilon'' = 0$  et  $\epsilon'' = 0,03$ . Le Bot et Le Montagner ont, tout récemment, grandement amélioré la technique en construisant un mesureur d'ondes stationnaires de haute précision et en utilisant le klystron CSF KR 331, plus puissant que le 723 A/B.

B. TECHNIQUES D'ÉTUDE EN FONCTION DE LA TEMPÉRATURE. — Les mesures par la méthode du guide d'ondes court-circuité avaient généralement été effectuées à la température ordinaire. Nous avons réalisé, pour  $\lambda = 3$  cm, un montage permettant l'étude de  $-180$  à  $+150^\circ$  C environ; le guide d'onde faisant suite à l'ondemètre et au mesureur d'ondes stationnaires est courbé à  $90^\circ$ . La partie supérieure (verticale) du guide est soigneusement fermée par un mica; à la partie inférieure, la cuve (de dimensions  $2,286 \times 1,016 \times 0,5$  cm) est fermée également par un mica. Cette cuve remplie d'une quantité connue de poudre est placée dans une boîte remplie d'ouate plongée dans un Dewar (ou un four électrique) (\*). Ces diverses précautions ont pour but

d'éviter la condensation de vapeur d'eau dans le guide. Des appareils semblables ont été réalisés pour  $\lambda = 1,25$  cm.

C. LA MÉTHODE DES POUDRES EN ONDES CENTIMÉTRIQUES. — L'étude des solides demanderait à être faite, de préférence, sur des monocristaux et suivant les diverses directions cristallographiques. Mais le nombre de substances que l'on peut examiner ainsi est limité. Ceci explique le succès des méthodes de Debye-Scherrer pour les rayons X et, plus récemment, les méthodes des poudres dans l'ultraviolet, le visible et l'infrarouge [voir note (2)] et l'effet Raman; des mesures sur les propriétés diélectriques des poudres avaient déjà été faites par Guillien [32] à [35], en ondes kilo- et hectométriques. Nous avons mis au point une méthode d'examen des poudres en ondes centimétriques [17], [18], [25]. Hélaine, Le Bot et Le Montagner [40], [41] ont montré que, pour les corps non absorbants, on pouvait déduire la constante diélectrique d'un bloc solide de celle de la poudre correspondante (voir, également, [6 bis]). On peut objecter à cette méthode que, pour les corps absorbants, la technique des poudres *ne donne pas la valeur absolue de  $\epsilon'$  et  $\epsilon''$*  (tassage plus ou moins grand de la poudre). C'est pourquoi, également, il est plus prudent de donner les courbes reliant les propriétés diélectriques à la température (pour chaque fréquence), plutôt que les courbes reliant ces propriétés à la fréquence (pour chaque température) : les mesures faites avec des poudres placées dans des appareils très différents (condensateurs, coaxiaux, guides) sont difficilement comparables. On sait néanmoins que, du point de vue théorique, il faut tracer les courbes  $\epsilon'(\nu, T)$  et  $\epsilon''(\nu, T)$  (voir partie I).

## I. LES DEUX TYPES D'ABSORPTION DEBYE DES SOLIDES DANS LE SPECTRE HERTZIEN.

Avant d'exposer les résultats expérimentaux, il nous semble indispensable de rappeler l'interprétation classique des propriétés diélectriques par la théorie de l'orientation dipolaire de Debye. Cela nous permettra de souligner une distinction fondamentale qui n'avait pas été faite nettement jusqu'ici et à laquelle nous a conduit récemment la représentation  $\text{Log } \nu_c - \frac{1}{T}$  (fig. I.3) : *L'existence de deux types différents de dipôles* : 1° *Les dipôles liés à l'orientation de molécules ou de groupements d'atomes dans le réseau cristallin (supposé parfait)*; 2° *Les dipôles liés aux défauts du réseau cristallin*.

Bien que la question soit en rapide développement, la présente mise au point nous a paru indispensable, en attendant un Mémoire ultérieur plus détaillé.

1° **La théorie de Debye de l'orientation dipolaire et ses perfectionnements.** — A). Sous sa forme primitive [15], [23], la théorie de Debye

(\*) Un étalonnage préalable permet de tenir compte des variations de longueur du guide d'ondes en fonction de la

température; la température est mesurée à l'aide d'un couple thermoélectrique.

s'adaptait plus particulièrement à l'orientation des molécules dans les liquides.

Pour les basses fréquences ( $\nu = 0$ ), les molécules polaires s'orientent sans retard en suivant les variations du champ électrique

$$\frac{\varepsilon_0 - 1}{\varepsilon_0 + 2} \frac{M}{d} = \frac{4\pi}{3} N \left( \alpha_0 + \frac{\mu^2}{3kT} \right). \quad (1)$$

Pour les hautes fréquences ( $\nu = \infty$ ), les molécules, freinées par les phénomènes de viscosité, ne peuvent s'orienter

$$\frac{\varepsilon_\infty - 1}{\varepsilon_\infty + 2} \frac{M}{d} = \frac{4\pi N}{3} \alpha_0. \quad (2)$$

Pour une fréquence moyenne ( $\nu = \frac{\omega}{2\pi}$ ), entre 0 et  $\infty$ , la théorie de Debye introduit une absorption liée au frottement visqueux

$$\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 2} \frac{M}{d} = \frac{4\pi N}{3} \left( \alpha_0 + \frac{\mu^2}{3kT} \frac{1}{1 + j\omega\tau} \right), \quad (3)$$

$\tau$ , temps de relaxation est, dans le cas des liquides, le temps nécessaire aux molécules pour acquérir à nouveau une redistribution au hasard, après avoir été orientées sous l'action du champ hertzien. Debye donne pour les liquides

$$\tau = \frac{4\pi\eta a^3}{kT}$$

( $\eta$ , viscosité du milieu;  $a$ , rayon moléculaire).

On sait [23] que l'on déduit des trois formules précédentes les relations fondamentales qui resteront valables dans tout ce qui suivra, quelle que soit l'origine des dipôles

$$\bar{\varepsilon} = \varepsilon' - j\varepsilon'',$$

$$\varepsilon' = \frac{\varepsilon_0 + \varepsilon_\infty x^2}{1 + x^2}, \quad (4)$$

$$\varepsilon'' = \frac{(\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty)x}{1 + x^2}, \quad (5)$$

avec

$$x = \omega\tau \left( \frac{\varepsilon_0 + 2}{\varepsilon_\infty + 2} \right). \quad (6)$$

Le maximum de l'absorption  $\varepsilon''$  et le milieu de la courbe reliant la constante diélectrique  $\varepsilon'$  à  $x$  est donné par  $x = 1$ , soit

$$\nu_c = \frac{1}{2\pi\tau} \left( \frac{\varepsilon_\infty + 2}{\varepsilon_0 + 2} \right). \quad (7)$$

Rappelons, enfin, que Cole et Cole [10] ont obtenu en éliminant  $x$  entre [4] et [5], une représentation particulièrement commode et qui permet, entre autres, de connaître  $\varepsilon_0$  et  $\varepsilon_\infty$ .

B) Les théories plus récentes de Bauer, Frohlich, Kirkwood, Onsager (voir, par exemple, le livre de Frohlich [29]) ne se rapportent plus spécialement à un liquide, mais à un *dipôle quelconque* (qu'implicitement on supposait, jusqu'ici, être lié à une molécule déterminée). Comme l'indique la figure I.1 (d'après [29]), on admet qu'une « particule » de charge  $Ze$  peut avoir, en l'absence de tout champ

électrique, deux états d'équilibre A et B (distants de  $a$ ), séparés par une barrière de potentiel de hauteur  $U$ . S'il n'y a pas de champ électrique extérieur, l'énergie de la « particule » est la même dans les deux positions; la particule oscille autour de l'une des deux positions (A, par exemple) avec une constante

de temps  $\tau_0 = \frac{1}{\nu_0}$ . Si, par suite d'une fluctuation,

l'énergie apportée permet le saut de la barrière de potentiel, la « particule » passe dans l'état B; en moyenne, en l'absence de champ électrique, la probabilité pour que la « particule » soit en A ou en B est  $\frac{1}{2}$ .

Mais l'introduction d'un champ extérieur  $F$  apporte deux modifications (voir fig. I.1) : la position d'équilibre est déplacée de  $r$ . L'énergie potentielle est modifiée de la quantité  $Ze a F$ .

Il importe de bien souligner ce rôle du champ

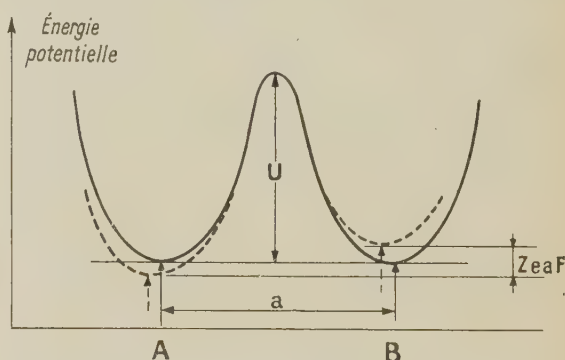


Fig. I.1. — D'après Frohlich [29].

extérieur  $F$  : il ne fait pas tourner le dipôle, mais il modifie seulement la probabilité du saut d'un dipôle d'une position d'équilibre à l'autre [29].

Cette théorie donne pour expression du temps de relaxation

$$\tau = \tau_0 e^{\frac{U}{kT}}. \quad (8)$$

Ici  $\tau_0$  est la constante de temps de la vibration libre (supposée unique).

On a vu plus haut que  $x = \omega\tau \left( \frac{\varepsilon_0 + 2}{\varepsilon_\infty + 2} \right)$  est égal à l'unité quand  $\varepsilon''$  est maximum. La fréquence correspondante  $\nu_c$  est donc donnée par

$$\nu_c = \frac{1}{2\pi\tau_0} \frac{\varepsilon_\infty + 2}{\varepsilon_0 + 2} e^{\frac{U}{kT}}, \quad (9)$$

$T$  étant la température correspondant à  $\nu_c$  donc au maximum de  $\varepsilon''$  ( $k = \frac{R}{N} = \text{const. de Boltzmann}$ ).

C. Nous verrons plus loin le rôle important joué par la formule précédente. Précisons dès maintenant que cette théorie, perfectionnement de celle de Debye, reste valable quelle que soit l'origine du dipôle envisagé. Mais, peut-être sous l'influence des travaux de Debye, on continuait à supposer que le dipôle était nécessairement lié à une molécule donnée, même pour les solides.



C'est l'existence de deux types distincts de dipôles que nous voulons souligner maintenant.

2. Quelques données expérimentales. — Les figures I.2 et I.2 bis rassemblent, à titre d'exemple, quelques données expérimentales typiques obtenues

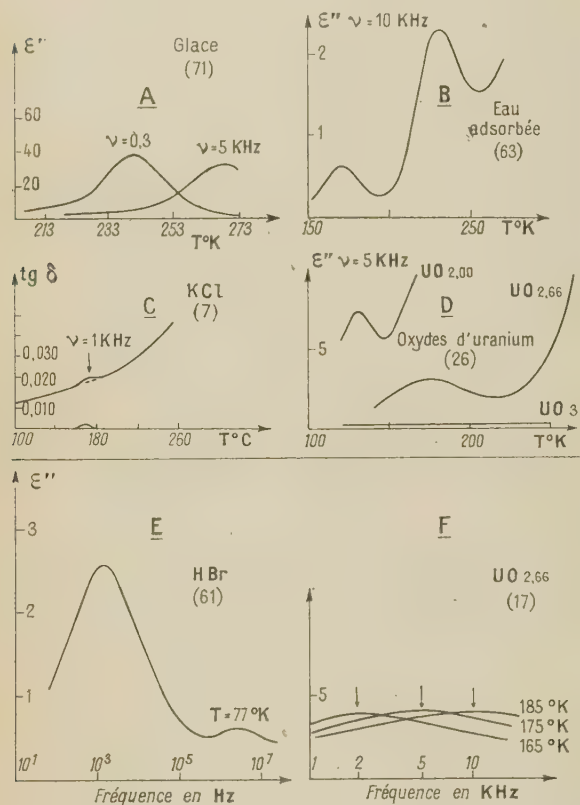


Fig. I. 2.

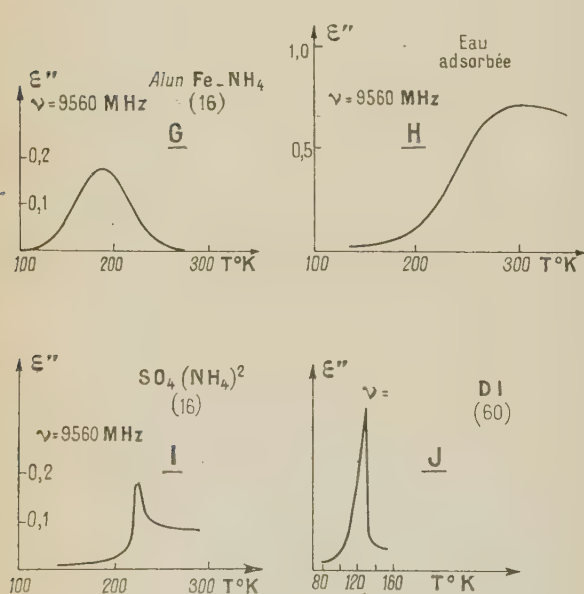


Fig. I. 2 bis.

par divers auteurs (les références sont indiquées sur les figures); nous anticiperons ici sur les interprétations données plus loin.

A. La figure I.2 se rapporte aux mesures faites en ondes kilométriques, soit en fonction de la température pour une fréquence donnée (fig. A, B, C, D), soit en fonction de la fréquence pour une température donnée (fig. E, F).

Les figures A et B représentent en fonction de la température, deux exemples d'absorption Debye liée à la présence d'eau; elle a été interprétée, jusqu'ici, par l'hypothèse de l'orientation des molécules. Les figures C et D représentent l'absorption Debye de cristaux ioniques ou semi-conducteurs que l'on ne peut interpréter que par l'existence de défauts de réseau (voir plus loin).

Les figures E et F donnent, en fonction de la fréquence, deux exemples de phénomènes dont le second  $UO_{2.66}$  ne peut s'expliquer que par les défauts de réseau; par contre, le premier, HBr, expliqué jusqu'ici par l'hypothèse de l'orientation des molécules, pourrait peut-être, à notre avis, relever également de la conception des défauts de réseau.

B. Les figures I.2-I.2 bis se rapportent aux mesures faites en ondes centimétriques. Elles ont pour but de souligner une distinction fondamentale (valable également en ondes kilométriques), distinction déjà indiquée par l'un de nous [16] à propos d'une étude sur les sels d'ammonium :

1° Phénomène du type Debye caractérisé par le fait que la température du maximum de l'absorption Debye varie avec la fréquence (fig. G, H);

2° Phénomène de transition de phase caractérisé par le fait que la température correspondant à la variation brusque de l'absorption est indépendante de la fréquence (fig. I et J et fig. I.3).

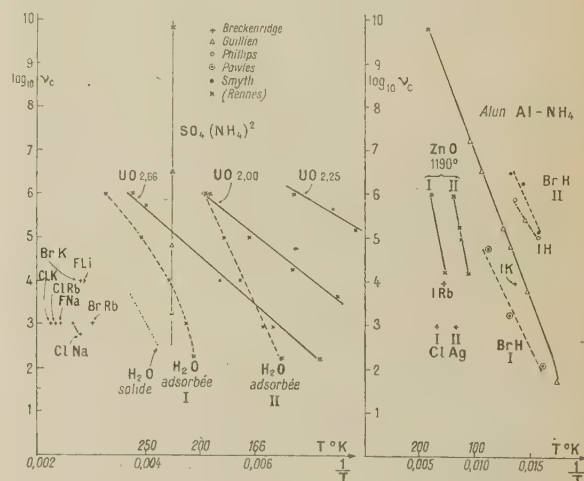


Fig. I. 3. — Représentation  $\log \nu_c - \frac{1}{T}$  (deux échelles distinctes ont dû être utilisées).

On se gardera de confondre la distinction faite : d'une part entre absorption Debye par orientation dipolaire et absorption Debye par défauts de réseau;

d'autre part entre phénomènes *type Debye* et phénomènes *type transition de phase*.

**3. La représentation  $\text{Log } \nu_c - \frac{1}{T}$ .** — Nous avons eu l'occasion de montrer [22] le rôle important et très général de la représentation  $\text{Log } \nu_c - \frac{1}{T}$  pour la coordination des divers résultats expérimentaux;

l'équation [9], de la forme  $\nu_c = A e^{-\frac{U}{RT}}$  imposait d'ailleurs cette représentation. Rappelons que  $\nu_c$  est la fréquence correspondant au maximum de l'absorption  $\varepsilon''$  à la température  $T$ .

La figure I.3 rassemble quelques résultats caractéristiques sur lesquels nous reviendrons d'ailleurs dans les chapitres ultérieurs : Mesures effectuées à Rennes (oxydes, eau adsorbée, sels d'ammonium); mesures de Breckenridge [7] sur les halogénures; de Guillien sur les aluns [32]; de Smyth [71], [72], Powles [61] et Phillips [60] sur l'eau et les hydracides. En ce qui concerne les résultats de Breckenridge, nous avons supposé que l'absorption maximum de  $\text{tg } \delta$  se produit pour la même fréquence que pour  $\varepsilon''$ ; cela revient à admettre que (comme l'a, à juste raison, supposé cet auteur) l'absorption des halogénures était très faible. Par ailleurs, Breckenridge ayant effectué ses mesures pour une fréquence donnée, il n'est pas possible de tracer les courbes  $\text{Log } \nu_c - \frac{1}{T}$  d'après ses résultats; de nouvelles expériences seraient à faire pour les halogénures, en fonction de la fréquence (voir Addendum p. 210).

On remarquera que, pour  $(\text{SO}_4)(\text{NH}_4)_2$ , la discontinuité est indépendante de la température. Par ailleurs, dans la plupart des cas (sauf la courbe I relative à l'eau adsorbée; voir chap. II), la courbe  $\text{Log } \nu_c - \frac{1}{T}$  est une droite, en accord avec la formule (9). Il serait important d'étendre ces résultats vers les plus basses fréquences et les plus basses températures.

Soulignons, enfin, l'existence fréquente de deux régions d'absorption distinctes, pour un même composé.

**4. Les deux types de dipôles.** — On sait que l'absorption de l'eau [71], des sels d'ammonium [32], des hydracides [60], [61] avait été interprétée en associant les dipôles à la rotation gênée de ces molécules. On peut encore discuter de la validité de cette hypothèse dans ces cas; mais il est certain que cette interprétation de l'origine des dipôles est absolument exclue dans le cas des halogénures ou des oxydes des figures I.2 et I.3. En effet, pour les oxydes d'uranium par exemple, la structure étudiée par Hering et Péro [38] est totalement incompatible avec toute interprétation par des dipôles résultant d'un groupement d'atomes; il en est évidemment de même pour KCl, par exemple.

Il convenait donc de rechercher une autre origine des dipôles. Or, comme nous l'avait signalé le Professeur Frohlich, Breckenridge a donné de ses observations sur les halogénures cette interprétation : Les dipôles résulteraient de l'association par paires + et — d'ions et de lacunes adjacents du réseau cristallin; le

champ haute fréquence extérieur amènerait une redistribution statistique de ces charges + et —. Sous réserve de nouvelles recherches expérimentales, nous étendrons aux semi-conducteurs et aux composés non stœchiométriques, en général, l'hypothèse que Breckenridge avait formulée pour les cristaux ioniques. Une théorie plus développée devra toutefois rendre compte de l'existence fréquente de deux régions d'absorption; signalons à ce sujet l'intérêt de la théorie développée par R. A. Sack [64].

Si nous attribuons donc aux divers oxydes que nous avons étudiés une absorption liée aux défauts du réseau, il serait prématuré de vouloir trop généraliser. Cependant, on peut se poser cette question : N'y a-t-il pas lieu de considérer deux effets distincts pour expliquer les deux types de phénomènes (continu et discontinu) signalés par l'un de nous [16] pour les sels d'ammonium ou pour les deux types de phénomènes signalés par Smyth, Powles et Phillips pour les hydracides. D'autre part, en ce qui concerne HCl, l'existence de défauts de réseau, semble confirmée par l'apparition d'une coloration orangée pour le solide très pur, à très basse température (nous avions déjà observé cette coloration lors de nos recherches en collaboration avec B. Vodar et Yeou Ta (*J. Physique Rad.*, 1937, 9, 282); Johnston et Martin viennent de la signaler récemment [44].

## 5. Conséquences. — A. La formule

$$\nu_c = A e^{-\frac{U}{RT}}$$

permet (\*) de déterminer l'énergie d'activation  $U$  de diffusion des défauts du réseau. Cette donnée complète celles apportées par d'autres techniques : spectres infrarouge, visible et ultraviolet; conductibilité en courant continu; diffusion de traceurs radioactifs, etc. On peut également déduire, de la formule précédente,

$$A = \frac{1}{2\pi\tau_0} \frac{\varepsilon_\infty + 2}{\varepsilon_0 + 2}$$

par la fréquence  $\nu_0 = \frac{1}{\tau_0}$  de vibration du réseau cristallin, en supposant que cette fréquence est unique; elle se trouve, en général, dans l'infrarouge lointain [58 bis].

On notera que, grâce à la courbe  $\text{Log } \nu_c - \frac{1}{T}$ , il n'est pas utile de connaître à l'avance  $\nu_0$  (d'après les mesures infrarouges) comme l'avait supposé Breckenridge; il suffit de déterminer  $A$  pour deux fréquences nettement différentes. Il sera intéressant de confronter de telles déterminations avec les données de l'infrarouge lointain.

B. On peut également déduire de la valeur de l'absorption maximum  $\varepsilon''$  à la température  $T$ , le nombre de défauts du réseau cristallin, grâce au raisonnement suivant indiqué par Breckenridge [7] : Dans le réseau ionique présentant des défauts, on représente les sites vacants adjacents du réseau cris-

(\*) Si l'on exprime  $U$  en calories par molécule-gramme, on utilise  $\frac{U}{RT}$  au lieu de  $\frac{U}{kT}$ , puisque  $k = \frac{N}{R}$ .



tallin (distants de  $a$ ) comme les deux états A et B de la figure I. 1 ( $a$  est de l'ordre de grandeur de la constante du réseau cristallin). Soit alors  $n_1$  le nombre d'ions se mouvant dans la direction du champ,  $n_2$  ceux se mouvant en sens inverse; le moment total est

$$M = \mu_0(n_1 - n_2), \quad \text{avec} \quad \mu_0 = Zea,$$

moment de la charge  $Ze$ .

En admettant une distribution de Boltzmann entre A et B,  $n_1$  et  $n_2$  sont données par

$$\begin{aligned} 2\tau \frac{dn_1}{dt} &= -n_1 e^{-\frac{ZeaF}{2kT}} + n_2 e^{+\frac{ZeaF}{2kT}}, \\ 2\tau \frac{dn_2}{dt} &= +n_1 e^{-\frac{ZeaF}{2kT}} - n_2 e^{+\frac{ZeaF}{2kT}}, \end{aligned}$$

Ici  $F = F_0 e^{j\omega t}$ . On en déduit, par la méthode de Debye, le moment moyen

$$\bar{\mu} = \frac{1}{1 + j\omega\tau} \frac{(Zea)^2 F}{kT},$$

d'où la polarisabilité  $\alpha_d$  liée aux défauts du réseau

$$\alpha_d = \frac{1}{1 + j\omega\tau} \frac{(Zea)^2}{kT}.$$

Par suite, au lieu de la formule classique

$$\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 2} \frac{M}{d} = \frac{4\pi N}{3} [\alpha_c + \alpha_a],$$

on doit utiliser la relation

$$\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 2} \frac{M}{d} = \frac{4\pi N}{3} \left[ \alpha_c + \alpha_a + \frac{n}{N} \alpha_d \right],$$

$n$  étant le nombre de défauts du réseau.

On déduit alors de la formule précédente, par la méthode de Debye

$$\varepsilon''_{\max} = \frac{4\pi n}{18kT} (Zea)^2 (\varepsilon_0 + 2)(\varepsilon_\infty + 2).$$

Donc la mesure de  $\varepsilon''_{\max}$  donnera  $n$ , nombre de défauts du réseau.

**6. Conclusion.** — Ce qui précède montre que l'absorption hertzienne constitue un nouveau et excellent moyen d'étude de la structure du réseau cristallin (défauts) complétant les méthodes spectrales (infrarouge, visible, ultraviolet) et les techniques de conductibilité, de diffusion, etc. On peut donc prévoir de nombreuses applications pratiques de la spectroscopie hertzienne des solides. Nous reviendrons sur cette question dans une publication ultérieure.

**Addendum.** — Au moment de déposer notre manuscrit, nous avons eu connaissance du travail de Kondo et Suita [44 bis] et d'Okada [58 a] qui ont repris les expériences de Breckenridge et trouvé deux régions d'absorption pour NaCl et KCl. Leurs résultats se raccordent mal avec ceux de Breckenridge, ce qui peut peut-être s'expliquer par le mode de traitement différent des cristaux et l'existence de deux régions d'absorption analogues à celles que nous avons signalées pour les oxydes et que ne prévoit pas la théorie de Breckenridge. (Voir à ce sujet M. et R. Freymann, *C. R. Acad. Sc.*, mars 1953.)

Manuscrit reçu le 15 novembre 1952.

## BIBLIOGRAPHIE.

- [1] ABADIE P. — Thèse, Paris, 1936; *Trans. Faraday Soc.*, 1946, **42**, 143.
- [2] BAUER E. — *Cahiers de Physique*, 1945, **27**, 33.
- [3] BAUER E. et MAGAT M. — *Bull. Soc. Chim.*, 1949, **7**, 8, D 341.
- [4] BAYLEY S. T. — *Trans. Faraday Soc.*, 1951, **47**, 518.
- [5] BENOIT J. — Thèse, Paris, 1945.
- [6] BERNARD R. — *Diplôme d'Études Supérieures*, Rennes, 1951 (tirage limité).
- [6 bis] BOTTCHEP. — *Rec. Trav. Chim. Pays-Bas*, 1945, **64**, 47.
- [7] BRECKENRIDGE R. G. — *J. Chem. Phys.*, 1948, **16**, 1959; 1950, **18**, 913.
- [7 bis] BRECKENRIDGE R. G. — *Imperfections in nearly perfect crystals*, Wiley, New-York, 1952, 219.
- [8] BRECKENRIDGE R. G., WARD J. et A. L. — *Phys. Rev.*, 1950, **78**, 315.
- [9] BUCHANAN T. J., HAGGIS G. H., HASTED J. B. et ROBINSON B. G. — *Proc. Roy. Soc. A*, 1952, **213**, 379.
- [10] COLE K. S. et COLE R. H. — *J. Chem. Phys.*, 1941, **9**, 341.
- [11] COLLIE G. H., RITSON D. M. et HASTED J. B. — *Trans. Faraday Soc.*, 1946, **42**, 129.
- [12] COOK H. F. — *Trans. Faraday Soc.*, 1951, **47**, 751.
- [13] DAY J. — *Bull. Soc. Sc. Bretagne*, 1949, **24**, 13.
- [14] DAY J. et FREYMAN M<sup>me</sup> M. et FREYMAN R. — *C. R. Acad. Sc.*, 1949, **229**, 1013.
- [15] DEBYE P. — *Polar molecules*. (Chem. Catalog Co, New-York, 1929).
- [16] FREYMAN M<sup>me</sup> M. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **233**, 1449.
- [17] FREYMAN M<sup>me</sup> M. et FREYMAN R. — *C. R. Acad. Sc.*, 1950, **230**, 2094.
- [18] FREYMAN M<sup>me</sup> M. et FREYMAN R. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **232**, 401 et 1096.
- [19] FREYMAN M<sup>me</sup> M. et FREYMAN R. — *J. Chem. Phys.*, 1952, **20**, 1970.
- [20] FREYMAN M<sup>me</sup> M. et FREYMAN R. — *J. Physique Rad.*, nov. 1952, 589 et *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **235**, 1125.
- [21] FREYMAN M<sup>me</sup> M., FREYMAN R. et LE BOT J. — *J. Physique Rad.*, 1948, **8**, 1, 29 et 45.
- [22] FREYMAN M<sup>me</sup> M., ROLLAND M<sup>lle</sup> et FREYMAN R. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **232**, 2312.
- [23] FREYMAN R. — *Les ondes hertziennes et la structure moléculaire* (Hermann, Paris, 1936).
- [24] FREYMAN R. — *Spectre infrarouge et structure moléculaire* (Gauthier-Villars, Paris, 1947).
- [25] FREYMAN R. — *Physica*, 1951, **17**, n° 3, 4, 328.
- [26] FREYMAN R. — *Étude des changements de phase par l'examen des propriétés diélectriques*. *J. Chim. Phys.*; Colloque « Changements de phase », Paris, juin 1952.
- [27] FREYMAN R. — *Onde électrique*, oct. 1950; *Ibid.*, déc. 1952.
- [28] FREYMAN R., LE BOT J. et LE MONTAGNER S. — *Atomes*, juin 1951.

- [28 bis] FREYMAN R. et ROHMER R. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **233**, 951.
- [29] FROHLICH H. — *Theory of dielectrics* (Oxford University Press, 1949).
- [30] FROMY. — *Mesures en radiotechnique* (Dunod, Paris, 1948).
- [31] GIRARD P. et ABADIE P. — *Trans. Faraday Soc.*, 1946, **42**, 40.
- [32] GUILLIEN R. — *Cahiers de Physique*, 1942, **11**, 17.
- [33] GUILLIEN R. — *Ann. Physique*, 1942, **17**, 238.
- [34] GUILLIEN R. — *Ann. Physique*, 1942, **17**, 334.
- [35] GUILLIEN R. — *Cahiers de Physique*, 1944, **23**, 43.
- [36] HAGGIS G. H., BUCHANAN T. J. et HASTED J. B. — *Nature*, 1951, **167**, 607.
- [37] HASTED J. B., HAGGIS G. H. et HUTTON P. — *Trans. Faraday Soc.*, 1951, **47**, 577.
- [38] HERING H. et PERIO P. — *Bull. Soc. Chim.*, 1952, **3**, 351.
- [40] HELAINE A. — *Diplôme d'Études Supérieures*, Rennes, 1950 (tirage limité).
- [41] HELAINE A., LE MONTAGNER S. et LE BOT J. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **232**, 403.
- [42] HENISCH H. K. — *Semi conducting materials* (Butterworths Scientific Publications, 1951).
- [43] VON HIPPEL A. — *Rev. Mod. Physics*, 1950, **22**, 221.
- [44] JOHNSTON W. H. et MARTIN. — *J. Chem. Phys.*, 1952, **20**, 534.
- 44 bis] KONDO S. et SUIA T. — *J. Phys. Soc. Japan*, 1950, **5**, 375.
- [45] KURBATOV. — *Z. Khim. S. S. S. R.*, 1950, **24**, 899.
- [46] KUROSAKI. — *J. Chem. Soc. Japan*, 1950, **71**, 522.
- [47] LAMB J. — *Trans. Faraday Soc.*, 1946, **42**, 238.
- [48] LAMB J. et TURNEY A. — *Proc. Phys. Soc.*, 1949, **62**, 272.
- [49] LANGEVIN S. — *Diplôme d'Études Supérieures*, Rennes, 1952 (tirage limité).
- [50] LE BOT J. — *Rev. gén. des Sc.*, 1948, **55**, 129.
- [51] LE BOT J. — *C. R. Acad. Sc.*, 1949, **228**, 749.
- [52] LE BOT J. et LE MONTAGNER S. — *C. R. Acad. Sc.*, 1949, **228**, 829.
- [52 bis] LE BOT J. et LE MONTAGNER S. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **233**, 862.
- [53] LETIENNE R. — *C. R. Acad. Sc.*, 1948, **227**, 506.
- [54] LE MONTAGNER S. et LE BOT J. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **233**, 1017.
- [55] MC INTOSH R., JOHNSON H. S., HOLLIES N. et MC LEOD L. — *Canadian J. Res.*, B, 1947, **25**, 566.
- [56] MAGAT M. — *J. Chim. Phys.*, 1948, **45**, 93.
- [57] MEINNEL J. — *Diplôme d'Études Supérieures*, Rennes, 1949 (tirage limité).
- [58] MOTT N. F. et GURNEY R. W. — *Electronic Processes In Ionic Crystal* (Oxford University Press, 1940).
- [58 a] OKADA T. — *Busseiron Kenkyu*, 1949, **20**, 171.
- [58 bis] PARODI M. — *Thèse*, Paris, 1938.
- [59] PAULING L. — *La nature de la liaison chimique*.
- [60] PHILIPPS C. S. E. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 216.
- [61] POWLES J. G. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 121; *Nature*, 1950, **165**, 686.
- [61 bis] ROHMER R. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **233**, 864.
- [62] ROLLAND M<sup>lle</sup> M. T. — *Diplôme d'Études Supérieures*, Rennes, 1951 (tirage limité).
- [63] ROLLAND M<sup>lle</sup> M. T. et BERNARD R. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **232**, 1098.
- [64] SACK R. A. — *Australian J. Sc. Research*, A 1952, **5**, 135.
- [65] SAXTON J. A. et LANE J. A. — *Phys. Roy. Meteorol. Soc.; Reports*, 1947, p. 278 à 325.
- [66] SEITZ F. — *Théorie moderne des solides* (Masson, Paris, 1949).
- [67] SHOCKLEY W. — *Electrons and holes in semi conductors* (Van Nostrand Co, 1951).
- [68] SHOCKLEY W. — *Imperfection in nearly perfect solids* (Wiley, New-York, 1952).
- [69] SLATER J. L. — *J. Appl. Phys.*, mars 1951.
- [70] SMOLUCHOWSKY. — *Phase transformation in solids* (Wiley, New-York, 1951).
- [71] SMYTH et HITCHCOK. — *J. Amer. Chem. Soc.*, 1932, **3**, 54 et 4631.
- [72] SMYTH et HITCHCOCK. — *J. Amer. Chem. Soc.*, 1933, **55**, 1830.
- [73] SOUTIF. — *J. Physique Rad.*, 1949, **10**, 61 D.
- [74] TAKEDA M. — *Bull. Chem. Soc. Japan*, 1951, **24**, 169.
- [75] TIENNOT. — *Diplôme d'Études Supérieures*, Rennes, 1952 (tirage limité).
- [76] WELLS. — *Structural inorganic Chemistry* (Clarendon Press, Oxford, 1950).



## LETTRES A LA RÉDACTION

UN SÉLECTEUR EN TEMPS DESTINÉ A LA MESURE  
DES TEMPS DE VOL DE NEUTRONS

Par P. DESNEIGES,

Commissariat à l'Énergie atomique,  
Centre d'Études nucléaires de Saclay (Seine-et-Oise).

On appelle « sélecteur en temps » un dispositif destiné à étudier la répartition d'événements dans le temps.

Le sélecteur en temps décrit ici est destiné à la mesure des temps de vol de neutrons lents issus d'un réacteur nucléaire [1]. Le faisceau de neutrons sortant d'un canal du réacteur est modulé, par tout ou rien, à l'aide d'un obturateur mécanique. L'instant d'ouverture ( $T_0$ ) est repéré par une cellule photoélectrique qui fournit une impulsion A prise comme origine des temps. Nous appellerons B les impulsions délivrées par un détecteur de neutrons placé sur le parcours de ceux-ci.

Chaque impulsion A déclenche le fonctionnement de l'appareil. Des circuits de numération dénombrent les impulsions B comprises entre les instants  $t_1$  et  $t_2$ ,  $t_2$  et  $t_3$ , ...,  $t_{10}$  et  $t_{11}$  (avec  $t_2 - t_1 = t_3 - t_2 = \dots = t_{11} - t_{10}$ ). L'appareil définit ainsi 10 intervalles adjacents, ou canaux, de durée identique égale à  $\tau$ . On peut, à volonté, choisir, pour  $\tau$ , soit  $20 \mu\text{s}$ , soit  $200 \mu\text{s}$ . Le premier canal peut être ouvert avec un retard  $T_n$  sur l'instant initial  $T_0$ .  $T_n$ , qui est un multiple de  $10\tau$  peut être choisi entre 0 et  $1,8 \cdot 10^{-2}$  s quand  $\tau = 200 \mu\text{s}$  et entre 0 et  $1,8 \cdot 10^{-3}$  s quand  $\tau = 20 \mu\text{s}$ . L'origine des temps  $T_0$  est repérée avec une précision de  $\pm 0,25 \mu\text{s}$ .

Description de l'appareil. — La figure 1 repré-

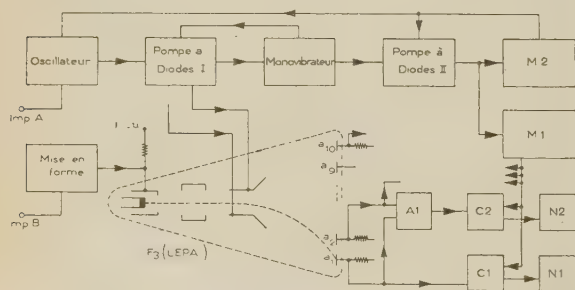


Fig. 1.

sente le schéma fonctionnel de l'appareil. L'impulsion A déclenche un oscillateur de période égale à  $\tau$ , qui définit la largeur des canaux. La tension sinusoïdale fournie par l'oscillateur, préalablement trans-

formée en signaux rectangulaires, attaque un circuit appelé « pompe à diodes » [2]. Chaque signal rectangulaire, envoyé dans un tel circuit, charge d'une

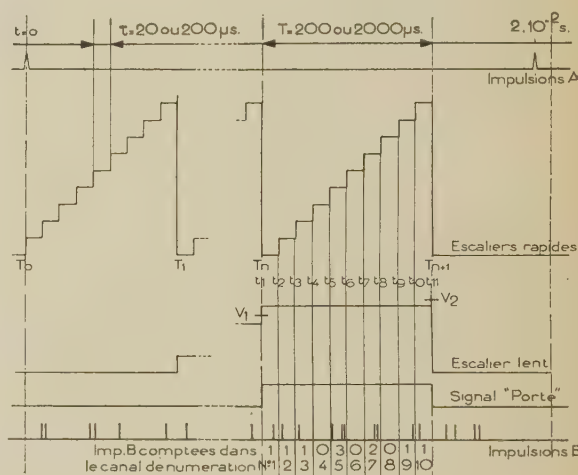


Fig. 2.

quantité d'électricité définie un condensateur bien isolé; la tension aux bornes du condensateur varie donc par sauts brusques, ou marches, séparés l'un de l'autre par l'intervalle  $\tau$ . Dès la fin de la dixième marche de l'escalier, que nous appellerons « escalier rapide » (fig. 2), l'apport des charges au condensateur est interrompu, celui-ci est rapidement déchargé et le processus recommence. Chaque impulsion A déclenche donc une série d'escaliers rapides de 10 marches.

Les « escaliers rapides » sont envoyés sur les plaques déflectrices d'un tube commutateur à faisceau laminaire [3]. Ce tube présente une structure analogue à celle d'un tube cathodique, mais l'écran y est remplacé par 10 anodes en forme de lames placées côte à côte. Une variation de la différence de potentiel entre les plaques déflectrices permet de commuter le faisceau d'électrons d'une plaque à l'autre. L'amplitude de l'escalier est telle, qu'à chaque marche, le faisceau est centré sur une anode et y demeure pendant la durée  $\tau$ . Les impulsions positives B, envoyées sur le Wehnelt, établissent le courant électronique, celui-ci étant normalement coupé grâce à une polarisation convenable. Le tube commutateur joue le rôle d'un circuit de coïncidences à 10 voies entre les escaliers d'une part et les impulsions B d'autre part. La cinquième anode, par exemple, recevra les impulsions B arrivant pendant la cinquième marche des premier, deuxième, troisième, ...



$n^{\text{ème}}$  escaliers rapides. A la sortie du tube à faisceau laminaire, seules les impulsions B présentes pendant un escalier déterminé, c'est-à-dire à des instants  $t$  compris entre  $T_n = 10 n \tau$  et  $T_{n+1} = 10 (n + 1) \tau$  doivent être envoyées dans les circuits de numération.

Cette condition est réalisée par 10 circuits de coïncidences  $C_1, C_2, \dots, C_{10}$  interposés entre chaque anode du tube à faisceau laminaire et les circuits de numération correspondant  $N_1, N_2, N_3, \dots, N_{10}$ . Chacun des circuits de coïncidence reçoit un signal « porte » pendant la durée de l'escalier choisi. La porte est obtenue à partir d'un escalier « lent » dont chaque marche est produite par le retour de l'escalier rapide correspondant. L'escalier lent attaque deux monovibrateurs. Le premier  $M_1$ , de seuil  $V_1$ , bascule à l'instant  $T_n$ , le deuxième  $M_2$ , de seuil  $V_2$ , à l'instant  $T_{n+1}$ . Le basculement de  $M_2$  commande la fin de l'escalier lent, l'arrêt de l'oscillateur et le retour de  $M_1$  à l'état initial. Le monovibrateur  $M_1$ , basculé pendant l'intervalle  $(T_n, T_{n+1})$  fournit le signal « porte ». Un commutateur permet de choisir à la fois les seuils  $V_1$  et  $V_2$  pour déplacer les 10 canaux en  $T_0, T_1, T_2, \dots, T_n$ . La sélection en temps des impulsions peut donc être effectuée dans 100 intervalles, 10 canaux fonctionnant simultanément.

Des circuits annexes d'anticoincidence  $A_1, A_2, \dots, A_{10}$  évitent qu'une impulsion B ne soit comptée dans deux canaux adjacents.

Les circuits de numérations  $N_1, N_2, \dots, N_{10}$  sont constitués par des échelles de 16 dont le temps de résolution est inférieur à 1  $\mu$ s.

Je remercie vivement M. R. Bibron qui a participé à l'étude et a effectué la réalisation de l'appareil.

- [1] BRILL T. et LICHTEBERGER H. V. — *Phys. Rev.*, 1947, **72**, 585.  
 [2] CHANCE Britton et al. — *Waveforms*, p. 615 (Mc Graw Hill Book Co, New-York, 1949).  
 [3] PIETRI G. — *Le Vide*, n° 37, 1952, 1113-1122.

Manuscrit reçu le 16 décembre 1952.

### PASSAGES DE COURANT UTILISÉS JUSQU'À DES PRESSIONS DE 4 000 kg/cm<sup>2</sup>

Par F. LAZARRE,  
Laboratoire des Hautes Pressions, Bellevue.

La nécessité où nous nous trouvons de disposer d'un grand nombre de passages de courant pour contrôler plusieurs phénomènes se passant dans l'enceinte, et y amener l'énergie électrique nécessaire au fonctionnement des appareils soumis à la pression, nous a amené à imaginer un type de passage peu encombrant. Les électrodes classiques à passage sur cône sont, en effet, relativement encombrantes. Les fils réunis en un faisceau passent à travers un orifice cylindroconique percé dans le porte-électrodes. L'étanchéité et l'isolement sont assurés par masticage des fils entre eux et à l'acier des porte-électrodes au moyen de résine Araldite, utilisée conformément aux indications du fabricant, c'est-à-

dire qu'après avoir mis en place les fils, on chauffe le porte-électrodes à 130°, puis dépose l'araldite en poudre qui fond dans le moule formé par le porte-électrodes, et enfin polymérisation à 200° pendant une heure. L'isolement est de l'ordre de  $10^{12} \Omega$ , aussi bien entre fils qu'entre fil et masse. Les dimensions du logement conique que nous avons utilisé sont : diamètres extrêmes, 2,2 mm et 1,5 mm; hauteur 4 mm, celles du prolongement cylindrique 1,5 mm de diamètre et 6 mm de long. Le procédé que nous utilisons permet de disposer sur une surface de 3 mm<sup>2</sup>, soit dix fils de 0,3 mm de diamètre et un fil de 0,5 mm, soit cinq fils de 0,3 mm et quatre fils de 0,5 mm. Nous avons utilisé des fils de cuivre et d'alliages pour thermocouples (ATE, BTE, constantan), mais d'autres fils pourraient être montés de la même façon. Dans le cas des fils de thermocouples, notre réalisation évite les corrections de f. é. m. dues aux passages sur des métaux de natures différentes. Pour assurer un isolement correct, chaque fil est verni séparément à l'araldite avant l'assemblage.

Le montage du porte-électrodes dans la paroi s'effectue suivant les méthodes habituelles.

Nous avons utilisé avec succès de tels passages jusqu'à des pressions liquides (pétrole) supérieures à 4 000 kg/cm<sup>2</sup> et des pressions d'azote atteignant 1500 kg/cm<sup>2</sup>, ce qui représente les limites d'emploi des appareils utilisés.

Il est difficile de prévoir le comportement des électrodes du type décrit ci-dessus aux pressions très élevées, car on ne possède pas de données sur les propriétés mécaniques de l'araldite sous pression, et dans nos passages, l'araldite supporte un effort d'expulsion. L'emploi de fils de bonne résistance mécanique au lieu de fils de cuivre consoliderait l'ensemble. En outre, l'araldite doit permettre le montage d'électrodes classiques pour très hautes pressions, du type à cône de Bridgman.

Manuscrit reçu le 26 janvier 1953.

### SUR LA MASSE DU PHOTON

Par Ferdinand CAP,  
Institut de Physique théorique  
de l'Université d'Innsbruck.

On sait qu'il existe de forts arguments [1] pour que la masse du photon ne soit pas zéro. Il est cependant intéressant d'y ajouter un nouvel argument [2] tiré de la théorie unitaire de Schrödinger [3]. Les formules fondamentales de cette théorie sont :

$$R_{ik} \equiv -\Gamma_{ik,s}^s + \Gamma_{is,k}^s + \Gamma_u^s \Gamma_{sk}^s - \Gamma_{is}^s \Gamma_{ik}^s = \lambda g_{ik}, \quad (1)$$

$$\Gamma_{kl}^i = 0, \quad (2)$$

$$\mathcal{G}_{\vee,i}^{ik} = 0 \quad (2^{\text{e}} \text{ équation de Maxwell}), \quad (3)$$

$$\left. \begin{aligned} \Gamma_{kl}^i &= \left\{ \begin{matrix} i \\ k \quad l \end{matrix} \right\} - h^{lm} \left( g_{ls} \Gamma_{km}^s + g_{ks} \Gamma_{lm}^s \right), \\ \Gamma_{kl}^i &= \frac{1}{2} h^{lm} \left( g_{km,l} + g_{ml,k} + g_{kl,m} \right) \\ &\quad + h^{lm} \left( g_{ls} \Gamma_{km}^s - g_{ks} \Gamma_{lm}^s \right), \quad \text{où } h^{ik} g_{il} = \delta_l^k. \end{aligned} \right\} \quad (4)$$



Si l'on se borne à un champ maxwellien  $\mathbf{G}_{ik}$  dont la grandeur est du premier ordre dans une géométrie de de Sitter [2]  $\varepsilon_i \delta_{ik} f_k$  et si l'on néglige tous les termes d'un ordre plus grand que 1, on a [3]

$$\mathbf{G}_{ik} = \varepsilon_i \varepsilon_k g_{ik}, \quad (5)$$

donc,

$$g_{ik} = \varepsilon_i \delta_{ik} f_k + g_{ik}^*, \quad (6)$$

En introduisant (6) en (4), on obtient

$$\Gamma_{kl} = \left\{ \begin{matrix} i \\ k \quad l \end{matrix} \right\}_{\text{de Sitter}}, \quad (7a)$$

$$\Gamma_{kl}^* = \frac{1}{2} f_i^{-1} (g_{km,l}^* + g_{ml,k}^* + g_{kl,m}^*). \quad (7b)$$

Alors, comme la partie symétrique de (6) est une solution de

$$R_{ik} = \lambda g_{ik}, \quad (1)$$

on se borne à  $R_{ik} = \lambda g_{ik}$ , ce qui donne avec (2) et (7b) et en se servant de la 1<sup>re</sup> équation maxwellienne

$$\begin{aligned} g_{km,l} + g_{ml,k} + g_{kl,m} &= s_{kml}, \\ \Delta f - \frac{1}{c^2} \ddot{f} - \kappa^2 f &= \text{grad } \rho + \frac{1}{c} \dot{j}, \\ \Delta f - \frac{1}{c^2} \ddot{f} - \kappa^2 f &= \text{rot } j, \end{aligned}$$

si l'on pose [2], [5]

$$\begin{aligned} g_{ik} &= f_i, & g_{ik}^* &= +i \mathcal{L}_i \sim i f_i, \\ s_{123} &= \rho, & j_x &= -i c s_{231}, \\ j_y &= +i c s_{131}, & j_z &= -i c s_{121}. \end{aligned}$$

Avec  $k^2 = \lambda a$ , on a donc pour la masse du

$$m = \frac{\kappa h}{2\pi c} \sim 10^{-65} \text{ g},$$

où  $a$  est de l'ordre de l'unité

- [1] DE BROGLIE L. — Mécanique ondulatoire du photon, Paris, 1949.  
 TONNELAT M. A. — *J. Physique Rad.*, 1951, **12**, 81.  
 [2] CAP F. — *Acta Phys. Austriaca*, 1952, **6**, 36 et 135.  
 [3] SCHRÖDINGER E. — *Proc. Roy. Irish Acad.*, 1947, **51**, 163 et 295; *Comm. Dublin Inst. Adv. Study*, A, n° 6.  
 [4] TONNELAT M. A. — *Ann. Physique*, 1944, **19**, 396.  
 [5] EINSTEIN A. — *Sitz. Ber. Preuss. Akad.*, Berlin, 1925, p. 414.

Manuscrit reçu le 3 février 1953.

## SUR LE RAYONNEMENT DE FREINAGE INTERNE DU $^{55}\text{Fe}$

Par A. MICHALOWICZ,  
 Institut du Radium,  
 Laboratoire Curie.

On sait qu'une transition par émission  $\beta$  ou par capture d'électron peut être accompagnée par un

faible rayonnement continu (Bremstrahlung); dans le cas d'une capture pure, l'étude de ce phénomène est particulièrement intéressante et permet d'atteindre l'énergie maximum de la transition. Les seuls résultats expérimentaux concernent le  $^{55}\text{Fe}$  [1], [2],  $^{37}\text{A}$  [3] et  $^{204}\text{Tl}$  [4], mais aucune expérience n'avait été encore réalisée donnant simultanément l'énergie maximum du spectre continu, la forme de son spectre et l'intensité absolue du rayonnement  $\gamma$  total. On a effectué cette analyse pour le  $^{55}\text{Fe}$  à l'aide d'une chambre d'ionisation  $4\pi$  pour détecter le rayonnement X et mesurer son intensité et d'un compteur à scintillations pour détecter les rayonnements et mesurer son énergie.

**Étude expérimentale.** — Le  $^{55}\text{Fe}$ , provenant d'Oak Ridge sous forme de  $\text{Cl}_2\text{Fe}$ , purifié [5] et réduit en oxyde, a permis de préparer deux sources minces (1,60 mg  $2.10^{-3}$  g/cm<sup>2</sup> et 7,7 mg  $10^{-2}$  g/cm<sup>2</sup>) et une

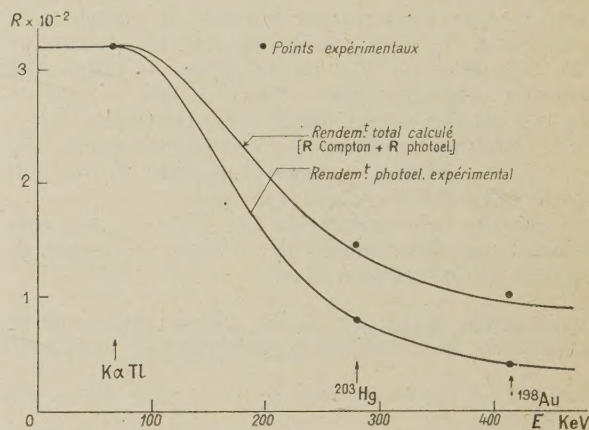


Fig. 1.

source épaisse (100 mg 0,5 g/cm<sup>2</sup>) déposées sur feuilles minces de polystyrène ( $\approx 1$  mg/cm<sup>2</sup>). L'intensité absolue (en  $\mu\text{C}$ ) a été obtenue à partir des deux sources minces mesurées dans une chambre d'ionisation  $4\pi$  remplie d'argon à 3 kg/cm<sup>2</sup>; le rayonnement X est complètement absorbé dans la chambre, et l'on tient compte de l'absorption dans les sources et supports, ainsi que du rendement de fluorescence : un excellent accord a été obtenu pour les deux sources minces. L'analyse du spectre  $\gamma$  a été effectuée avec la source épaisse à l'aide d'un compteur à scintillation (E. M. I. 5311) en utilisant un cristal de I Na de 9 mm d'épaisseur; le spectromètre a été étalonné en rendement et en largeur de raies pour des énergies jusqu'à 1,3 MeV. Le rendement absolu du cristal a été obtenu par la méthode de coïncidences utilisant  $^{198}\text{Au}$  (411 keV et  $^{203}\text{Hg}$  (72 et 280 keV) (fig. 1).

### Résultats et comparaison avec la théorie. —

**a. Forme du spectre et énergie maximum.** — On a construit à partir de la formule théorique de Morrisson et Shiff [6] les formes des spectres pour une énergie maximum  $W = 200, 210$  et  $225$  keV. Ces spectres ont été corrigés de l'absorption dans la source et les écrans, du rendement du cristal et de l'effet de la distribution de Gauss. Le spectre expé-



perimental se superpose au spectre théorique transformé pour  $W = 200$  keV dans la région comprise entre 50 et 150 keV; la fin du spectre expérimental est plutôt en accord avec le spectre  $W = 225$  keV (fig. 2). Finalement, on adopte  $W = (215 \pm 10)$  keV, ce qui donnerait pour l'énergie totale de la transition  $^{55}\text{Fe} \rightarrow ^{55}\text{Mn}$  :

$$W_0 = W + W_K = (222 \pm 10) \text{ keV.}$$

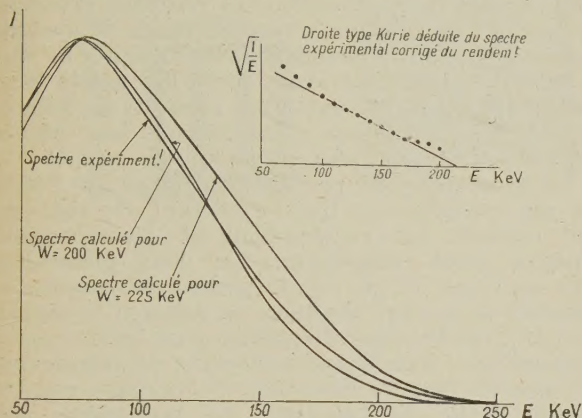


Fig. 2.

En bon accord avec la valeur trouvée par réaction nucléaire [7]. On a également tracé la droite (suivant la méthode de Kurie pour le spectre  $\beta$ ), déduite de la forme expérimentale corrigée seulement de l'effet de rendement (fig. 2), l'énergie maximum obtenue, environ 210 keV, donne une valeur satisfaisante.

*b. Rapport d'embranchement.* — La mesure de l'intensité absolue à la chambre d'ionisation comparée à l'intensité totale du rayonnement  $\gamma$  déduit du spectre expérimental et compte tenu du rendement du cristal, donne un rapport d'embranchement

$$\frac{N_\gamma}{N_K} = (4 \pm 1) \cdot 10^{-5};$$

la théorie de Morisson et Schiff conduit à  $2,95 \cdot 10^{-5}$  pour  $W = 225$  keV et  $2,50 \cdot 10^{-5}$  pour  $W = 210$  keV (les valeurs d'intensité sont calculées pour des énergies supérieures à 50 keV).

**Conclusion.** — Bradt et Preiswerk [3] ont trouvé un spectre expérimental situé entre les spectres théoriques construits pour 200 et 210 keV, indiquant un bon accord entre la forme théorique et expérimentale; au contraire, notre étude semble montrer une différence de forme. Cet écart pourrait provenir d'un défaut d'estimation des corrections d'absorptions et de rendement; toutefois, le fait que la transition  $^{55}\text{Fe} \rightarrow ^{55}\text{Mn}$  est interdite pourrait également expliquer cette différence : les calculs de Morisson et Schiff étant effectués pour les transitions permises.

[1] BRADT, GUGELOT, etc. — *Helv. Phys. Acta*, 1946, **19**, 222.

[2] MEADER et PREISWERK. — *Phys. Rev.*, 1951, **85**, 595.

[3] EADER MATEOSIAN et SMITH A. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 1186.

[4] ANDERSON C. E., WHEELER G. W. et WASON W. W. — *Phys. Rev.*, 1952, **87**, 668.

[5] MICHALOWICZ et LEDERER. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 668.

[6] SCHIFF et MORRISON. — *Phys. Rev.*, 1940, **68**, 24.

[7] STELSON P. H. et PRESTON W. M. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 469.

Manuscrit reçu le 21 janvier 1953.

## DISPOSITIF POUR L'ÉTUDE EXPÉRIMENTALE RAPIDE DES ÉQUATIONS D'ÉTAT DES GAZ AUX TEMPÉRATURES ÉLEVÉES

Par J. R. SAUREL,

Laboratoire des Hautes Pressions, Bellevue.

Nous avons étudié deux dispositifs simples permettant des travaux rapides sur la compressibilité de gaz portés à des températures élevées.

Le premier (fig. 1 a) <sup>(1)</sup> comprend une enceinte E, contenant un piézomètre P formé d'une ampoule cylindrique R prolongée par un capillaire C plongeant dans la cuvette M contenant du mercure. Celle-ci constitue le noyau d'une bobine de succion et s'abaisse quand la bobine est sous tension, en libérant le capillaire du mercure et en mettant R en communication avec E. On emplit E de gaz à la pression désirée et l'on coupe le courant. M revient à sa position. En comprimant le gaz en E, on amène le mercure à un niveau repéré N dans le capillaire.

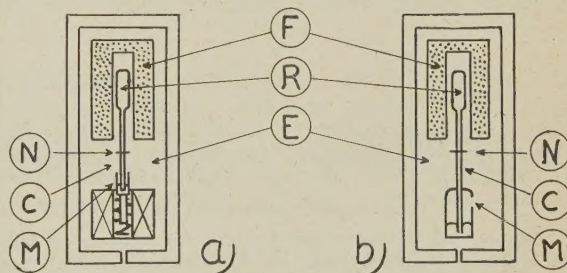


Fig. 1.

On connaît avec précision les volumes intérieurs de E et de l'ensemble RC : si la masse de gaz introduite dans E est connue, on obtient la densité du gaz en R. D'ailleurs, en choisissant les conditions initiales, on se trouve dans une région de *pvt* déjà étudiée avec soin et l'on connaît indirectement la densité. En agissant sur les pressions et températures, on a pour chaque remplissage une courbe à densité constante.

Dans le second dispositif (fig. 1 b) <sup>(1)</sup>, la cuvette M solidaire du capillaire C est entièrement fermée, à l'exception d'un trou latéral. E peut pivoter autour d'un axe horizontal et le volume du mercure est tel que lorsque E est horizontale l'extrémité libre de C émerge, mettant ainsi E et R en communication.

<sup>(1)</sup> Pour donner plus de clarté à ces figures, les proportions des appareils n'ont pas été respectées.



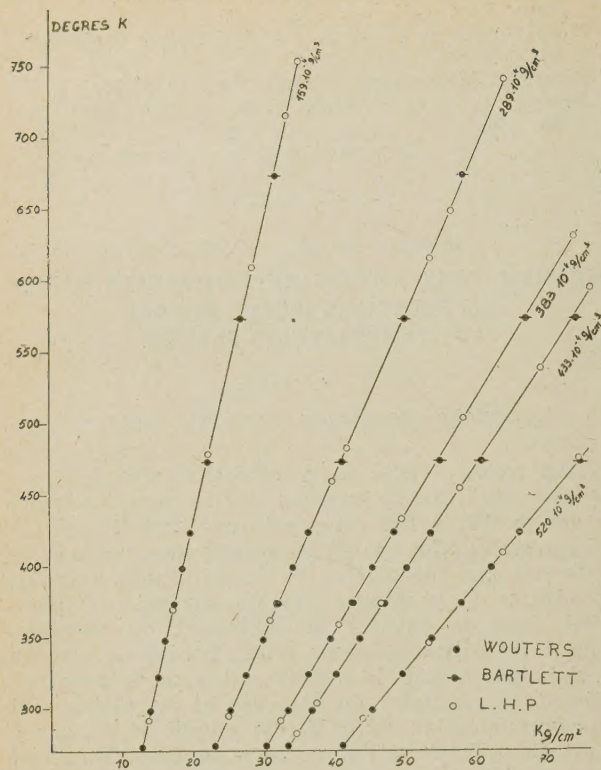


Fig. 2.

Quant on remet E verticale, on isole une certaine quantité de gaz et l'on opère comme avec le premier dispositif. L'appareil fonctionnant depuis plus d'un an au L. H. P. nous a servi à des études préliminaires rapides. Il peut atteindre 500 atm à haute température. P est en Pyrex ou quartz, et le repérage du mercure se fait par contact électrique. Le four F entourant R est constitué par un enroulement de RNC sur réfractaire d'Alundum. La température est mesurée par thermocouples. Les résultats approchés des courbes de la figure 2 ont été relevés en quelques heures pour l'azote commercial pur jusqu'à 80 atm. A titre indicatif, nous avons porté des points interpolés graphiquement à partir des résultats de Wouters et Bartlett. La précision de la méthode sera discutée ultérieurement pour des travaux plus soignés.

Les deux dispositifs permettent évidemment l'étude du gaz compresseur, mais également de tout gaz non corrosif, par compressions et décompressions répétées après remplissage. Les deux piézomètres sont de forme simple et de petites dimensions. La quantité de mercure nécessaire est faible et le mercure peut être remplacé par du gallium pour les très hautes températures. Une bonne uniformité de température est assurée dans les réservoirs, F occupant une très grande partie de l'enceinte. Le piézomètre peut comprendre un réservoir de pré-compression permettant un remplissage sous basse pression.

BARTLETT. — *J. Amer. Chem. Soc.*, 1930, **52**, 1363.

WOUTERS. — *Thèse*, Amsterdam, 1941.

Manuscrit reçu le 26 janvier 1953.

## REVUE DES LIVRES

SIMON (F. E.), KURTI (N.), ALLEN (J. F.) MENDELSSOHN (K.) **Physique des basses températures** (1 vol. 21,5 × 13,5 cm, 132 pages, Pergamon Press, Londres, 1952).

Ce volume est la reproduction de quatre conférences faites à la Royal Institution pour les différents auteurs. Il peut être considéré comme une introduction excellente dans ce domaine de la Physique.

Voici les titres des sujets traités :

Les problèmes aux basses températures; vue d'ensemble, par F. E. SIMON;

Le domaine des températures inférieures à 1° absolu, par N. KURTI;

L'hélium liquide, par V. F. ALLEN;

La Superconductibilité, par K. MENDELSSOHN.

DUPUY.

**Revue annuelle de la Science nucléaire**, volume n° 1 (1 vol. 15 × 22,5 cm, 645 pages, Annual Reviews Inc., Stanford, Californie, 1952).

Ce volume, le premier de la série, correspond aux développements de la Science nucléaire pendant l'année 1950. Les sujets traités sont les suivants : la Physique du méson; les récents progrès dans la théorie de la structure nucléaire;

les niveaux d'énergie des noyaux légers; les moments nucléaires; les interactions des rayons cosmiques; la masse et l'abondance relative des isotopes; les accélérateurs de grande énergie : cyclotron, synchrocyclotron, protonsynchrotron, synchrotrons, accélérateurs linéaires; la détection des particules nucléaires; la Chimie des éléments actinides; la séparation électromagnétique des isotopes stables; les indicateurs isotopiques dans les systèmes chimiques; la Chimie analytique des noyaux; la spectroscopie atomique et moléculaire; les phénomènes aux basses températures; les progrès en métallurgie; la géochimie; les effets génétiques des radiations; quelques aspects de l'action biologique des radiations de grande énergie; les radioisotopes dans la recherche en Biochimie et en Médecine; les isotopes stables dans la recherche en Biochimie; les radioisotopes dans la recherche pour l'étude des sols et de la nutrition.

Il est inutile de souligner l'intérêt que présente une telle publication.

DUPUY.

**Erratum.** — Dans l'analyse du livre de M<sup>e</sup> LANG (R.), **Further laboratory and workshop notes** (janvier 1953), p. 64, deuxième et avant-dernière lignes du texte, lire : *Journal of scientific instruments*, au lieu de : *Review of scientific instruments*.